Rückstoßimplantation nach Kernreaktionen als Mittel zum Studium von Kernquadrupolwechselwirkungen

INAUGURALDISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
der
Freien Universität Berlin
Fachbereich Physik

vorgelegt von
Thomas Wichert
aus Berlin

März 1975

Rückstoßimplantation nach Kernreaktionen als Mittel zum Studium von Kernquadrupolwechselwirkungen

I n a u g u r a l d i s s e r t a t i o n

zur Erlangung der Doktorwürde

der

Freien Universität Berlin

Fachbereich Physik

vorgelegt von

Thomas Wichert

aus Berlin

- März 1975 -

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

1. Gutachter: Prof. Dr. E.Recknagel

2. Gutachter: Prof. Dr. E.Matthias

Tag der mündlichen Prüfung: 25. 3. 1975

Tag der Promotion:

Zusammenfassung

Mit Hilfe von atomaren Sonden, die durch Kernreaktionen an einem Beschleuniger erzeugt worden sind, ist es möglich, systematische Untersuchungen von elektrischen Kernquadrupolwechselwirkungen in einer nahezu frei wählbaren Umgebung vorzunehmen. Entstehen diese Sonden innerhalb einer dünnen Reaktionsschicht (∿1000 Å), können selbst niederenergetische Kernreaktionen zur Implantation in eine dahinterliegende Matrix ausgenutzt werden. Dadurch wird die Zahl der meßbaren Wechselwirkungen, deren Stärke vom Quadrupolmoment der Sonde und dem elektrischen Feldgradienten der Matrix bestimmt wird, beträchtlich erweitert.

Als Beispiel dient die Implantation zweier Sonden in polyvalente, nichtkubische Metalle: Der Kern ^{67}Ge ist in den Matrizen Gallium, Kadmium, Indium, Zinn und Antimon untersucht worden, der Kern ^{67}Zn in Kadmium (vgl. auch BLM 75 und BGL 75). Die gemessenen Wechselwirkungen zeigen Frequenzspektren, die auf eine polykristalline Struktur der gedampften Metallschichten und einen substitutionellen Gitterplatz der Sonden schließen lassen.

Ein Vergleich dieser Meßergebnisse mit den bereits bekannten Daten weist auf die Möglichkeit hin, daß die Stärke des elektrischen Feldgradienten der Matrix auch durch die Sonde bestimmt wird. Dabei bietet sich die Verwendung des bei Kernreaktionen auftretenden Rückstoßimpulses als weiterer Weg an, über systematische Untersuchungen Einblick in die Struktur des elektrischen Feldgradienten zu erhalten.

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41548901_0034

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Ziel und Grenzen der Untersuchung	1
2. Hyperfeinwechselwirkungen nach Kernreaktionen (DPAD)	8
2.1 Elektrische Feldgradienten in Metallen	8
2.2 Meßvorschrift zur Bestimmung von elektrischen Quadrupolwechselwirkungen	11
2.3 Meßaufbau und Meßtechnik	21
3. Auswahl von Sonden und Matrizen	25
4. Rückstoßimplantation	29
4.1 Implantationsrate und Energie-Reichweite Beziehung	29
4.1.1 Wechselwirkung der α-Teilchen im Schichttarget und Reaktionskinematik	32
4.1.2 Energieverlust und Reichweiteverteilung der Rückstoßkerne	36
4.1.3 Ausbeuteberechnung der implantierten Rückstoßkerne	42
4.2 Target-Präparation	47
4.2.1 Erzeugung dünner Schichten	49
4.2.2 Kontrolle der Schichtdicken	53
4.3 Ergebnisse der Messung	54
4.3.1 Implantation von ^{67}Ge in Cd, In, Sn und Sb	57
4.3.2 Implantation von ^{67}Zn in Cd	63
4.3.3 Implantation von ^{67}Ge in Ga (Vergleich Dicktarget und "Dünne Schicht")	64
5. Analyse und Diskussion der gemessenen Wechselwirkungen	66
5.1 Analyse der Messung	
5.1.1 Ort und Umgebung der Sonde	67
5.1.2 Frequenzanalyse und Fehler	71
5.1.3 Alignment, Temperatur und Schichtdicke	78
5.2 Feldgradienten in nichtkubischen Metallen	81
5.2.1 Vergleich der Wechselwirkungen von Sondenpaaren	86
5.2.2 Änderung des Feldgradienten an einer festen Sonde in verschiedenen Matrizen	89

Seite

5.2.3 Änderung des Feldgradienten in einer festen Matrix für verschiedene Sonden 92

5.2.4 Was bestimmt die Größe des effektiven Feldgradienten? 95

Anhang

A1. Quadrupolwechselwirkung im Einkristall (AAH 53) 99

A2. Methode der "Kleinsten Quadrate" (χ^2-Test) 102

A3. Röntgenstrahlbeugungsdiagramme des Indium- und Antimon-Targets 105

Literaturnachweis 109

1. Ziel und Grenzen der Untersuchung

Die Fortschritte, die in den letzten Jahren mit Hilfe von niederenergetischen Kernreaktionen auf dem Gebiet der Hyperfeinphysik gemacht worden sind, zeigen, daß ihre Methoden auch zum Studium von Festkörpereigenschaften verwendet werden können. Dabei dient ein entsprechend "präparierter" Atomkern als Meßsonde zur Untersuchung von magnetischen und elektrischen Feldern im atomaren Bereich der betreffenden Substanzen. Je nach den auftretenden Feldern in der Kernumgebung finden dabei die Wechselwirkungen zwischen einem Magnetfeld und dem magnetischen Dipolmoment oder einem elektrischen Feld und dem elektrischen Quadrupolmoment des Kerns statt. Durch die große Zahl der bestimmten magnetischen Dipolmomente, die im Rahmen der Hyperfeinphysik gemessen worden sind (HOS 73, REC 74), existiert eine breite Basis zur Untersuchung von Magnetfeldern in allen vorkommenden Phasen: Festkörper, Flüssigkeit, gasförmiger und Plasmazustand (FRF 67, KRN 71, GOK 71, KAW 74).

Auf dem Gebiet der elektrischen Wechselwirkung zwischen einer Sonde und ihrer Umgebung sind dagegen nicht so weite Fortschritte gemacht worden, da in diesem Fall der Zugang von der festkörperphysikalischen Seite her erschwert ist: Es ist nicht möglich, elektrische Feldgradienten (im folgenden EFG abgekürzt) der benötigten Stärke (10^{17} V/cm^2) künstlich zu erzeugen, um so die kernphysikalische Größe, das Quadrupolmoment - analog dem Dipolmoment - im ersten Schritt zu bestimmen und dann unbekannte elektrische Felder zu messen. Man ist in diesem Fall auf die natürlichen elektrischen Felder angewiesen, die im atomaren bzw. kristallinen Bereich existieren. Da gewöhnlich die Stärke dieser EFG am Kernort nicht bekannt ist, führen Messungen der Hyperfeinwechselwirkung zwischen Kern und Umgebung nur zur Kenntnis des Produktes aus Quadrupolmoment und Feldgradienten. Von beiden Parametern ist das Quadrupolmoment die physikalische Größe, die sich nicht ändert, mißt man die elektrische Wechselwirkung einer beliebigen aber festen Sonde unter dem Einfluß variierender Feldgradienten in

verschiedenen Matrizen. Man kann erwarten, durch Festhalten des einen Parameters - des Quadrupolmomentes - den zweiten Parameter - den EFG - näher zu bestimmen. Dazu ist jedoch Voraussetzung, die Sonden in einer frei wählbaren Umgebung studieren zu können.

Entsprechend den verschiedenen Meßmethoden der Hyperfeinphysik gibt es mehrere Wege, dieses Ziel zu erreichen: Die in Frage kommenden gebräuchlichsten Methoden sind die Kernquadrupolresonanz (NQR bzw. NMR[1]), der Mößbauer-Effekt (ME), sowie die Beobachtung der gestörten anisotropen γ-Winkelverteilung (PAC und PAD[2]). Da die erste Methode den Kern in seinem energetischen Grundzustand untersucht, kann sie mit den sogenannten "konventionellen" Methoden (z.B. Atomstrahl) zur Messung von Hyperfeinwechselwirkungen (AJZ 60, S. 557) kombiniert werden und so in speziellen Fällen zur direkten Messung des Quadrupolmomentes und dann des elektrischen Feldgradienten führen. Die anderen beiden Methoden studieren dagegen den Kern in einem energetisch angeregten Zustand mit einer Lebensdauer τ. Während ME sowie PAC vorwiegend radioaktive Präparate benutzen, werden die isomeren Zustände im Fall der PAD durch Kernreaktionen an einem Beschleuniger erzeugt. Wegen ihrer Sensitivität gegenüber verschiedenen, gleichzeitig auftretenden Hyperfeinwechselwirkungen sollen nur die zeitdifferentiellen Meßmethoden Berücksichtigung finden, nicht aber die zeitintegralen. Dadurch muß die elektronische Auflösezeit klein gegen die Lebensdauer der radioaktiven Probe sein, wobei der Bereich von 1 - 10 nsec eine untere Grenze der Zeitskala bildet. Bei der folgenden Diskussion über die Möglichkeiten einer Target-Präparation werden daher keine Meßmethoden in Verbindung mit Coulombanregung vorkommen, wie IMPAC[3] (z.B. GBH 66) und RACE[4] (z.B. WEH 73), da die so erzeugten Sonden Lebensdauern von nur wenigen Nanosekunden besitzen.

---

[1] NQ/MR = Nuclear Quadrupole/Magnetic Resonance

[2] PAC/PAD = Perturbed Angular Correlation/Distribution

[3] IMPAC = Implantation Perturbed Angular Correlation

[4] RACE = Resonant Absorption following Coulomb Excitation

Ähnlich ist das Fehlen der Methode der Kernorientierung (NO[5]) begründet, da sie im allgemeinen einen zeitlichen Mittelwert für die Wechselwirkung liefert. Zur Präparation der Sondenumgebung gibt es für diese Meßmethoden die folgenden Möglichkeiten

(a) Chemische Methoden, welche die Lösung eines Elementes in einem zweiten bewirken (ist möglich bei NQR, ME, PAC, PAD)

(b) Implantation radioaktiver Atome mittels eines Isotopenseparators (ME, PAC)

(c) Aktivierung und gleichzeitige Implantation mit Hilfe eines Stack-Targets (bedampfte Folien); danach Messung "off-line" (ME, PAC)

(d) Selbstimplantation durch Kernreaktionen; über verschiedene Kernreaktionen lassen sich die entsprechenden Reaktionsprodukte in der Reaktionsmatrix studieren (PAC, PAD)

(e) Implantation angeregter Sondenkerne durch Kernreaktionen auf Grund der übertragenen Rückstoßenergie (PAD).

Die Möglichkeiten (a) - (c) waren bis vor wenigen Jahren die gebräuchlichsten zum Studium der Quadrupolwechselwirkungen. Dabei wird (a) begrenzt durch die Löslichkeit der verwendeten Substanzen, (b) durch die relativ niedrige Implantationsenergie von etwa 100 keV, die Reichweiten der Ionen von nur einigen 100 Å ermöglicht; daneben werden hier ebenso wie bei (c) gleichzeitig Verunreinigungen auf den Oberflächen implantiert. Die Lebensdauer der verwendbaren Niveaus für PAC ist gewöhnlich bei etwa 500 nsec begrenzt im Gegensatz zu den isomeren Zuständen, die durch Kernreaktionen erreicht werden können (PAD). Damit können die Methoden (d) und (e) das Zeitfenster gegenüber der PAC verlängern, in dem die Wechselwirkungen studiert werden. Das entspricht einem größeren Bereich meßbarer Wechselwirkungen sowie einer höheren möglichen Meßgenauigkeit. Bedenkt man, daß bei (d) ein Wechsel der Matrix mit einem Wechsel des Reaktionsmechanismus verbunden ist, so scheint (e) von allen Präparationsmöglichkeiten die variabelste zu sein, da sie den großen Bereich der verwendbaren Lebensdauern (nsec bis msec) verbindet mit der nahezu freien

---

[5] NO = Nuclear Orientation

Wahl der Sondenumgebung.

Obwohl diese Umgebung im Falle der Quadrupolwechselwirkung von essentieller Bedeutung ist, da geeignete EFG nur in nichtkubischen Gittern gefunden werden können, haben Rückstoßimplantationsexperimente beim Studium der magnetischen Hyperfeinwechselwirkung einen wesentlich breiteren Eingang gefunden: Geht man aus von sogenannten "on-line" Experimenten mit einem Beschleunigerstrahl, so haben Grodzins und Mitarbeiter (GBH 66) bereits 1966 den bei Coulombanregung auf die Sonde übertragenen Rückstoßimpuls zur Implantation von Sm-, Gd- und Dy-Kernen in eine magnetisierte Eisen-Matrix ausgenutzt. Diesen zeitintegralen Messungen der Larmorpräzession folgen 1967 zeitdifferentielle Messungen mit angeregten ^{19}F-Kernen, implantiert in Eisen, Kobalt und Nickel (BMS 67). Im wesentlichen haben sich jedoch die Experimente auf zeitintegrale Messungen beschränkt, bedingt durch die kurzen Lebensdauern der erreichbaren isomeren Niveaus. Es hat sich dabei gezeigt, daß bei der Interpretation der integralen Meßergebnisse Vorsicht geboten ist, berücksichtigt man nicht alle am Sondenort auftretenden Wechselwirkungen (RKH 74). Große Bedeutung erhält die IMPAC-Technik durch das Auftreten von sogenannten "transient fields", die extrem hohe Magnetfelder am Kern erzeugen und so den Zugang zu sehr kurzen Lebensdauern ermöglichen (LIW 71).

Dagegen wird die IMPAC-Technik erst seit Beginn der 70er Jahre zum Studium von elektrischen Quadrupolwechselwirkungen verwendet, wiederum mit dem Nachteil, daß die Messungen zeitintegral erfolgen. Hiervon bildet eine Ausnahme die Implantation der angeregten ^{111}Cd-Sonde in ein Cd-Backing, wobei die elektrische Wechselwirkung zeitdifferentiell beobachtet und die hohe Rückstoßenergie auf Grund der Coulombanregung ausgenutzt worden ist (DLF 72). Daneben zeigt dieses Experiment, daß die so angeregten und von ihrem ursprünglichen Gitterplatz entfernten Sonden der gleichen Wechselwirkung ausgesetzt sind, wie sie am Ort von radioaktiven ^{111}Cd-Kernen herrscht, vergleicht man es mit PAC-Messungen an einem Präparat (RAR 71). Eine allgemeine

Anwendung der Implantation zur freien Wahl geeigneter EFG beim Studium von Quadrupolwechselwirkungen erforderte daher eine Verbindung des Vorteils der Coulombanregung in Form der hohen Rückstoßenergie mit der Möglichkeit einer zeitdifferentiellen Beobachtung des so erzeugten isomeren Niveaus. Da durch die zweite Forderung die Coulombanregung mit ihren Rückstoßenergien von bis zu mehreren 10 MeV im allgemeinen als Möglichkeit entfällt, muß die kleinere Reichweite der Sonden nach Kernreaktionen durch entsprechend dünnere Reaktionsschichten und eine entsprechend hohe Anzahl von Schichtpaaren - bestehend aus Reaktionsschicht und Implantationsmatrix - kompensiert werden. Die Verwendung solcher Schichttargets ermöglicht dann auch die Ausnutzung niederenergetischer Reaktionen mit leichten Teilchen.

Da die Hyperfeinwechselwirkung zwischen Sonde und Umgebung sich im Falle eines elektrischen Feldes äußert in der zeitlich periodischen Änderung der Amplitude des Meßeffektes, ist die Genauigkeit der Datenanalyse proportional der Zahl der beobachteten Perioden und der Größe des Meßeffektes. Die Anzahl der Perioden pro Zeiteinheit ist umgekehrt proportional dem Produkt aus Quadrupolmoment und EFG - der Quadrupolkopplungskonstanten ν_Q. Im Gegensatz zur magnetischen Wechselwirkung, bei der die entsprechende Größe, die Larmorfrequenz ω_L, durch Anlegen eines äußeren Feldes beeinflußt werden kann, besteht hier nicht die Möglichkeit einer geeigneten Adaption von ν_Q an das durch die Lebensdauer τ der angeregten Sonde gegebene Beobachtungszeitfenster. - Die Amplitude des Meßeffektes wird bestimmt durch den Anteil der Kerne, die einer eindeutigen Wechselwirkung in der Implantationsmatrix ausgesetzt sind. Daher spielt die Kenntnis über die Reichweiten und die Endplätze der verwendeten Sonden eine wesentliche Rolle für die Messung der Quadrupolwechselwirkungen und deren Interpretation. Weil diese Kenntnis noch sehr lückenhaft ist, wird die Analyse der Daten im Rahmen der Arbeit vorwiegend auf die Extraktion der Kopplungskonstante ν_Q hinzielen und erst in zweiter Linie auf zusätzliche Änderungen in der Amplitude des Meßeffektes eingehen. Dieser Weg ist besonders dann notwendig, wenn die ge-

messene Wechselwirkung ohnehin schon schwer analysierbar ist, z.B. infolge eines kleinen ν_Q, und eine Vermehrung der zu bestimmenden Parameter ihre physikalische Signifikanz vermindert.

Die den Rahmen der Arbeit absteckenden physikalischen Bedingungen sind unter anderem vorgegeben durch die Eigenschaften des benutzten 7 MV Van-de-Graaff-Beschleunigers der Firma HVEC. Dadurch werden teilweise Probleme behandelt, die sich bei der Verwendung anderer Beschleuniger erübrigen. Ein zentrales Problem bleibt jedoch die Einordnung der mittels eines Beschleunigers "on-line" gemessenen Daten in die Menge der bereits bekannten Quadrupolwechselwirkungen, da sie in jedem einzelnen Fall die Kenntnis des Gitterplatzes der verwendeten Sonde voraussetzt. So ist das Ziel dieser Arbeit, die die Möglichkeit einer nahezu freien Wahl von angeregten Kern-Sonden und -Umgebungen bei der Verwendung von Beschleunigern und Mehrschichten-Targets zeigen soll, eng mit deren Grenzen verbunden: Einmal durch die Unsicherheit in der Bestimmung des Gitterplatzes, an dem die Messung erfolgt, zum anderen durch die erzeugten Strahlenschäden, die den Meßeffekt verringern. Jedoch erweitern sich diese Grenzen in zunehmendem Maße durch mögliche komplementäre Experimente, wie z.B. Channeling-Experimente zur Lokalisierung der Meßsonden. Durch die Verwendung von Metallen als Implantationsmatrizen kann der Einfluß der zu erwartenden Strahlenschäden gering gehalten werden. Daneben sollen aber die erzielten systematischen, experimentellen Ergebnisse weitere Ansatzpunkte für theoretische Arbeiten zur Deutung der Kernquadrupolwechselwirkungen liefern.

Die Wahl der zu verwendenden Sonden ist abhängig von der Meßmethode, und für die Matrizen, in denen diese Sonden studiert werden, sollten schon Wechselwirkungen anderer Sonden gemessen worden sein, um durch vergleichende Systematiken möglichst viele Daten von elektrischen Wechselwirkungen zusammenfassen zu können. Kapitel 2 befaßt sich daher mit der Art der Hyperfeinwechselwirkungen, wie sie für die folgenden Messungen zu erwarten sind: Dem Mechanismus, der für die Entstehung von EFG in Metallen verantwortlich ist, sodann dem Einfluß der Wechsel-

wirkung zwischen Kernquadrupolmoment und EFG auf die Form der gestörten γ-Winkelverteilung und der Erzeugung und dem Nachweis des Meßeffektes. Entsprechend werden in Kapitel 3 die zu verwendenden Kernsonden und die Implantationsmatrizen ausgewählt.
Die Durchführung der Implantationen und deren Ergebnisse werden in Kapitel 4 beschrieben, wobei näher auf die geeignete Dimensionierung der verwendeten Schichttargets einzugehen ist. Kapitel 5 wird sich mit der Analyse der Meßergebnisse im Rahmen der bekannten Daten für die einzelnen Matrizen befassen, um so Aussagen über die den effektiven EFG am Ort eines Fremdatoms bestimmenden Parameter zu erhalten. Ferner soll der Einfluß der verwendeten Targets auf die Eindeutigkeit der extrahierten physikalischen Größen diskutiert werden, um die allgemeine Verwendbarkeit von Schichttargets zum Studium von Quadrupolwechselwirkungen zu prüfen. Dazu soll an Hand von Messungen bei verschiedenen Temperaturen die Gleichwertigkeit dieser Targets gegenüber den sonst verwendeten Anordnungen gezeigt werden; dasselbe Ziel verfolgt ein Vergleich der Wechselwirkungen in gedampften, dünnen Schichten mit denen in einem Dicktarget.

2. Hyperfeinwechselwirkungen nach Kernreaktionen (DPAD)

Zur Messung der Wechselwirkung, die zwischen den Momenten eines Atomkerns und seiner Umgebung auftritt, stehen eine Anzahl verschiedener Methoden zur Verfügung, die unter kernphysikalischen Aspekten bereits gut etabliert sind. Aus der Diskussion im vorangegangenen Kapitel erweist sich die Methode der "Gestörten γ-Winkelverteilung nach Kernreaktionen" DPAD[1] als brauchbar für die gestellte Zielsetzung; dabei werden die γ-Quanten von Atomkernen emittiert, die vorher durch Kernreaktionen produziert und angeregt worden sind. Der Meßeffekt beruht auf der Abweichung von einer kernphysikalisch vorhersagbaren Intensitätsverteilung der γ-Strahlung; die Bestimmung dieser Änderung als Funktion des Winkels und der Zeit gestattet dann Aussagen über die Art der Wechselwirkung.

Abschnitt 2.2 stellt eine quantitative Verbindung zwischen den beobachtbaren Meßgrößen und den zu bestimmenden Parametern her. Die Anforderung an die Meßtechnik für den Aufbau des Experimentes und den Nachweis der einzelnen Meßgrößen wird in Abschnitt 2.3 behandelt. Die elektronische Umgebung des Atomkerns ist in diesem Fall durch den Einfluß elektrischer Feldgradienten geprägt. Er bestimmt neben dem Quadrupolmoment die Stärke der zu beobachtenden Wechselwirkung. Seine Zusammensetzung in nichtkubischen Metallmatrizen wird in Abschnitt 2.1 beschrieben.

2.1 Elektrische Feldgradienten in Metallen

Metallische Substanzen lassen sich dadurch charakterisieren, daß sie hinsichtlich ihrer elektrischen Eigenschaften in einfachster Näherung durch positive Ionenrümpfe und freie Leitungselektronen beschrieben werden können. Entsprechend wird der Feldgradient in nichtkubischen Metallen durch drei Beiträge

---

[1] DPAD = (Time) Differential Perturbed Angular Distribution

bestimmt:

(a) Das elektrostatische Feld V_{zz}^{lat}, erzeugt durch die positiven Ionenrümpfe des Gitters; es läßt sich für die jeweiligen Gittertypen direkt berechnen, wie es z.B. bei de Wette gezeigt wird (WET 61); ausgedrückt durch die Gitterkonstanten a und c sowie die Ladung der Ionenrümpfe Z gilt für hexagonale Gitter (DAP 61)

$$V_{zz}^{lat} = Z \cdot (0{,}0065 - 4{,}3584(c/a - 1{,}633))/a^3 \qquad (2.1)$$

(b) Den Beitrag der Leitungselektronen V_{zz}^{loc} innerhalb der Gitterzelle, in welcher sich das Sondenatom befindet. Zu seiner Berechnung sind zwei verschiedene Ansätze gemacht worden: Der erste berücksichtigt alle Leitungsbandelektronen bis zur Fermigrenze und setzt die Kenntnis ihrer Wellenfunktion voraus. Diese Methode, bezeichnet als "Fermi-Volumen" Effekt, ist erfolgreich für die Metalle Be (POD 60), Sb (HYD 66), Mg (JMD 73) und Cd (MSD 73) angewendet worden. Der zweite Ansatz berücksichtigt nur die Elektronen an der Fermikante, den "Fermi-Oberflächen" Effekt, der als direkt proportional zum ionischen Anteil (mit umgekehrten Vorzeichen) angesetzt werden kann, da er als eine Deformation der Fermioberfläche unter Einfluß der Gitterpotentiale interpretiert wird (WGY 65). Dieses Bild scheint sinnvoll für Metalle mit einer hohen elektronischen Zustandsdichte an der Fermikante, wie sie bei Übergangsmetallen auftritt.

(c) Gitterionen und Leitungselektronen bewirken eine Deformation der abgeschlossenen Elektronenschalen des Sondenatoms, so daß ein weiterer Beitrag zum EFG am Kernort durch Antishielding entsteht. Er wird nach Sternheimer durch die Einführung der Parameter $(1-\gamma_\infty)$ und $(1-R)$ berücksichtigt. Zusätzlich kann auf die effektive Ladung der positiven Ionenrümpfe korrigiert werden infolge der Verteilung der Leitungselektronen im Gitter durch den Renormalisierungsfaktor $(1+\delta)$ (DAR 69).

Damit läßt sich der effektive Feldgradient am Kernort beschreiben durch (FRF 67)

$$V_{zz} = (1-R)\cdot V_{zz}^{loc} + (1-\gamma_\infty)(1+\delta)\cdot V_{zz}^{lat} \qquad (2.2)$$

Von den Vorfaktoren sind spezifisch für die Sonde (1-R) und $(1-\gamma_\infty)$, wobei (1-R) annähernd gleich 1 gesetzt werden kann und für γ_∞ der Antishielding-Faktor für das freie Ion verwendet wird (FEJ 69). Auch der Faktor $(1+\delta)$, charakteristisch für das jeweilige Gitter, ist gewöhnlich nahe bei 1. - Während V_{zz}^{lat} nur vom Gitter abhängt, sollte V_{zz}^{loc} von der Art des Gitters und der elektronischen Konfiguration der Sonde bestimmt werden. Experimentell gemessene Quadrupolwechselwirkungen $eQ\cdot V_{zz}$ zeigen, daß selbst unter Berücksichtigung der Unzuverlässigkeit für die Größe der angenommenen Quadrupolmomente eQ der relativ genau berechenbare Summand $(1-\gamma_\infty)V_{zz}^{lat}$ häufig nur einen geringen Teil des Feldgradienten erklären kann (z.B. MSD 73). Damit trägt gerade der Anteil, der theoretisch nur schwer kalkulierbar ist, gegeben durch V_{zz}^{loc}, maßgeblich zum Feldgradienten am Sondenort bei.

Experimentell wie theoretisch ist das Wissen um die Quadrupolwechselwirkung durch große Unsicherheiten bezüglich dieser einzelnen Parameter gekennzeichnet, wobei auf experimenteller Seite die bekannte Hauptschwierigkeit in der Trennung des Feldgradienten vom Quadrupolmoment besteht, während auf theoretischer Seite für eine Berechnung des elektronischen Anteils zum Feldgradienten, V_{zz}^{loc}, die Kenntnis der Wellenfunktionen für die Elektronen in der Umgebung der Sonde fehlt. Weiter wird die Situation kompliziert durch die experimentelle Schwierigkeit, die Vorzeichen der beiden Summanden in Gl. (2.2) zu bestimmen, da gewöhnlich weder das Vorzeichen der Quadrupolwechselwirkung noch das des Momentes bekannt ist; nur mit Hilfe der Theorie kann das Vorzeichen von V_{zz} bestimmt werden und ein Vergleich mit dem Experiment erfolgen, selbst wenn es gelingt, das Vorzeichen der Kopplungskonstanten zu messen.

Es liegt daher nahe, durch die systematische Variation äußerer Parameter, wie z.B. der Proben-Temperatur oder des Druckes auf

die Probe, weiteren Einblick in die Struktur der Größe V_{zz} zu erhalten. Im Falle der Untersuchung einer beliebigen, aber festen Probe in verschiedenen nichtkubischen Metallmatrizen ist es dagegen nicht so offensichtlich, welche Parameter hierbei verändert werden: Dieses Problem ist identisch mit der Frage nach dem Einfluß von Fremdatomen auf den EFG einer Matrix, da durch sie ein Störpotential für die Leitungselektronen des Gitters in der Umgebung der Sonde entsteht. Solche Störpotentiale lassen sich auf mehrere Arten berücksichtigen, u.a. durch die Zerlegung der Elektronenwellenfunktionen nach Partialwellen und die Bestimmung der dazugehörigen Phasenverschiebungen η_ℓ (FRI 52, FRI 58). Für diese η_ℓ und für die Valenz- oder Ladungsdifferenz ΔZ zwischen Fremdatom und Gastgitteratom gilt nach Friedel die Summenregel

$$\Delta Z = \frac{2}{\pi} \sum_{\ell} (2\ell+1)\eta_\ell \qquad (2.3)$$

die physikalisch eine Abschirmung der durch die Sonde eingeführten Ladungsänderung über ein endliches Volumen bedeutet. Innerhalb des effektiven EFG sollte dieser Vorgang Berücksichtigung in seinem elektronischen Anteil finden. Da in zahlreichen Fällen, wie oben erwähnt, der Gitteranteil der EFG klein dagegen ist, wird gemäß Gl.(2.2) solch eine Veränderung in der Stärke des effektiven Feldgradienten sichtbar sein, wobei als formaler äußerer Parameter die Ladungsdifferenz ΔZ dient.

2.2 Meßvorschrift zur Bestimmung von elektrischen Quadrupolwechselwirkungen

Besitzt ein Atomkern mit dem Drehimpuls $\vec{I}$ auf Grund seiner Ladungsverteilung ein elektrisches Quadrupolmoment eQ, so bewirkt ein elektrischer Feldgradient am Kernort eine zeitliche Änderung des Kerndrehimpulses. Im Falle eines axialsymmetrischen Feldgradienten erfolgt die Quantisierung bezüglich dessen Symmetrieachse; die zeitliche Änderung besteht dann in einer Rotation um die Symmetrieachse des EFG. Andererseits

hängt die räumliche Emissionswahrscheinlichkeit für ein γ-Quant beim Zerfall eines isomeren, angeregten Kernzustandes ab von dem Winkel zwischen der Richtung dieses Drehimpulsvektors und der Emissionsrichtung. Besteht die Möglichkeit, die Drehimpulsvektoren eines Kernensembles auszurichten, sie zu "alignen", so kann unter einem festen Winkel θ eine zeitliche Änderung der Intensität der emittierten γ-Strahlung festgestellt werden als Folge der Wechselwirkung zwischen dem Quadrupolmoment und dem EFG. Wird die Form der räumlichen γ-Anisotropie durch die Funktion $W(\theta,t)$ beschrieben, und ist die mittlere Wahrscheinlichkeit für den Zerfall des isomeren Niveaus $\lambda=1/\tau$, so ergibt sich für die von einem Detektor registrierte Intensität

$$I(\theta,t) = I_o \cdot e^{-t/\tau} \cdot W(\theta,t) + U \qquad (2.4)$$

wobei U ein zeitlich konstanter Untergrund ist. Über den Drehimpuls des Kerns ist also die Intensität $I(\theta,t)$ der emittierten γ-Strahlung gekoppelt an die elektrische Quadrupolwechselwirkung des Kerns mit seiner Umgebung. Die Form der Winkelverteilung $W(\theta,t)$ soll im folgenden diskutiert werden.

Sobald die Ladungsverteilung im Atomkern nicht mehr als punktförmig betrachtet werden kann, lautet der klassische Hamiltonoperator für die Wechselwirkung zwischen der Ladungsdichte im Kern $e\rho_n$ und der sie umgebenden elektrischen Ladung, die ein Potential V_e erzeugt, (KOP 58)

$$H_{el} = e \int_V \rho_n V_e \, dv \qquad (2.5)$$

Entwickelt man das Potential V_e um den Kern in einer Taylor-Reihe, so stellen ihre einzelnen Summanden die Wechselwirkung zwischen den elektrischen 2^n-Polen des Kerns und den entsprechenden Ableitungen des Potentials dar ($n = 0,2,\ldots$). Nach der Coulombwechselwirkung ($n = 0$) kommt als nächste Wechselwirkung das Produkt aus dem Kernquadrupolmoment und dem Gradienten des elektrischen Feldes ($n = 2$)

$$H_Q = (Q_{ij})(V_{ij}) \quad \text{mit} \quad Q_{ij} = e \int \rho_n \, x_i x_j \, dv$$

$$V_{ij} = \frac{\partial^2 V}{\partial x_i \partial x_j} \quad (i,j=1,2,3) \tag{2.6}$$

Transformiert man die beiden Tensoren auf ihre Hauptachsen, so sind sie durch je drei Skalare festgelegt. Bei Axialsymmetrie des EFG reduziert sich mit Hilfe der Laplace-Gleichung ($\Delta V = 0$) der Tensor für den Feldgradienten auf eine freie Variable, so daß sich im Koordinatensystem des Feldgradienten die Wechselwirkung schreiben läßt als

$$\begin{aligned} H_Q &= \tfrac{1}{2} e (Q_{xx} V_{xx}(0) + Q_{yy} V_{yy}(0) + Q_{zz} V_{zz}(0)) \\ &= \frac{V_{zz}(0)}{4} \, e \int (3z^2 - r^2) \, \rho_n \, dv \end{aligned} \tag{2.7}$$

(mit $V_{xx} = V_{yy} = -\frac{1}{2} V_{zz}$ und $r^2 = x^2 + y^2 + z^2$). Im körperfesten System des Kerns ist das Quadrupolmoment definiert durch

$$e\hat{Q} \equiv e \int (3z'^2 - r^2) \, \rho'_n \, dv' \tag{2.8}$$

und es erhält $\hat{Q}$ die Dimension einer Fläche (Einheit $\triangleq$ 1 barn $\triangleq 10^{-24} cm^2$). Schließt der Kernspin I mit dem Feldgradienten den Winkel α ein, und berücksichtigt man, daß für die Transformation zwischen beiden Koordinatensystemen gilt

$$\int (3z^2 - r^2) \rho_n dv = \int (3z'^2 - r^2) \rho'_n dv' \cdot (\tfrac{3}{2}\cos^2\alpha - \tfrac{1}{2}) \tag{2.9}$$

dann wird aus (2.7)

$$H_Q = \frac{e\hat{Q} V_{zz}(0)}{8} (3\cos^2\alpha - 1) \tag{2.7a}$$

Mit Hilfe des Korrespondenzprinzips läßt sich hieraus leicht der quantenmechanische Hamiltonoperator gewinnen: Der Drehimpuls-Vektor $\vec{I}$ kann nur noch die diskreten Werte $\hbar\sqrt{I(I+1)}$ annehmen, wobei I ganz- oder halbzahlig und $\hbar$ die durch 2π dividierte Planck'sche Konstante ist. Entsprechendes gilt für die

Projektionen I_z auf die Quantisierungsachse mit den (2I+1) möglichen Eigenwerten $\hbar \cdot m$ (m = I,I-1,...,-I). Der Hamiltonoperator lautet dann, benutzt man die Symmetrieachse des Feldgradienten zur Quantisierung,

$$H_Q = \frac{e\hat{Q}V_{zz}(0)}{8} (3I_z^2 - |\vec{I}|^2)/|\vec{I}|^2 \qquad (2.7b)$$

und er besitzt die Energieeigenwerte

$$E_Q(m) = \frac{e\hat{Q}V_{zz}(0)}{8} \cdot \frac{3m^2 - I(I+1)}{I(I+1)} \qquad (2.10)$$

Es ist üblich, auch das klassische elektrische Quadrupolmoment $e\hat{Q}$ neu zu formulieren, indem man die Energie des Systems betrachtet für den Fall, daß die Projektion des Kernspins I auf die Symmetrieachse des EFG ihren maximalen Wert einnimmt,

$$E_Q(I) = \frac{e\hat{Q}V_{zz}(0)}{8} \cdot \frac{2I-1}{I+1} \qquad (2.11)$$

Ein Vergleich von Gl.(2.11) und Gl.(2.7) ergibt dann für $e\hat{Q}$ ausgedrückt in Einheiten des "quantenmechanischen Quadrupolmomentes" $eQ = e \int (3z^2-r^2)\, \rho_n \, dv$

$$e\hat{Q} = 2eQ \cdot \frac{I+1}{2I-1} \qquad (2.12)$$

Hierin spiegelt sich wieder, daß quantenmechanisch erst Quadrupolmomente von Zuständen observabel sind, deren Spin größer gleich $\hbar$ ist. Gl.(2.10) erhält so die Form

$$E_Q(m) = \frac{eQV_{zz}(0)}{4} \cdot \frac{3m^2 - I(I+1)}{I(2I-1)} \qquad (2.10a)$$

Hierbei führt man als neue Größe die Quadrupolkopplungskonstante ν_Q ein, die definiert wird durch

$$\nu_Q \equiv \frac{eQV_{zz}(0)}{h} \qquad (2.13)$$

Der Übergang zwischen zwei Energieeigenwerten entspricht somit einer Kreisfrequenz des Drehimpulsvektors

$$\omega_o = \frac{E_Q(m)}{\hbar} - \frac{E_Q(m')}{\hbar} = 3(m^2-m'^2)\,\frac{2\pi\nu_Q}{4I(2I-1)} \qquad (2.14)$$

und für die kleinsten auftretenden Frequenzen gilt mit
$\omega_Q' = 2\pi\nu_Q/4I(2I-1)$

$$\omega_o = \begin{cases} 3\omega_Q' & \text{für I : ganzzahlig} \\ 6\omega_Q' & \text{für I : halbzahlig} \end{cases} \qquad (2.15)$$

Im Gegensatz zur magnetischen Wechselwirkung hebt die Wechselwirkung zwischen Quadrupolmoment und EFG nur teilweise die energetische Entartung bezüglich der m-Quantenzahlen auf, da die Energieniveaus nach m^2 aufspalten; außerdem ist diese Aufspaltung nicht äquidistant. Die Art der Präzession der Kernspins ist dadurch unterschiedlich von der für eine magnetische Wechselwirkung:

(a) Es treten mehrere Frequenzen als ganzzahlige Vielfache der Grundfrequenz ω_o auf, deren Anzahl durch I gegeben ist.

(b) Zustände mit den Quantenzahlen +m und -m präzedieren mit der gleichen Frequenz, jedoch in entgegengesetzter Richtung.

Damit ist über Gl.(2.14) eine Verbindung hergestellt zwischen der zeitlichen Änderung des Drehimpulses und der Größe der elektrischen Quadrupolwechselwirkung.

Die Richtungen der Kernspins, die dem Einfluß der Feldgradienten ausgesetzt werden, sind normalerweise isotrop im Raum verteilt, so daß die Intensität der emittierten γ-Strahlung ebenfalls isotrop für den Beobachter erscheint. Es ist also nötig, eine "Markierung" der Kernspins zu erreichen, die eine zeitlich differentielle Beobachtung der Spin-Präzessionsfrequenzen erlaubt. Solch eine "Markierung" kann durch Polarisieren oder Alignen der Drehimpulse erreicht werden, was quantenmechanisch einer ungleichen Besetzung der m-Quantenzahlen entspricht, wobei im Falle des Alignments diese für +m und -m gleich groß ist.

Die damit verbundene Form der Verteilung der emittierten γ-Strahlung $W(\theta)$ ist an anderen Orten ausführlich hergeleitet worden und ebenfalls deren zeitliche Änderung - oder Störung - unter dem Einfluß einer statischen Wechselwirkung (FRS 65): Schießt man auf Atomkerne geladene Ionen hinreichender Energie, so können die Ionen nur Drehimpulse in einer Ebene senkrecht zur Einschußrichtung auf die Kerne übertragen. Die so präparierten Kerne erhalten ein Spin-Alignment, betrachtet man den Ionenstrahl als Quantisierungsachse. Die Wahrscheinlichkeit, unter einem Winkel θ zu dieser Achse ein γ-Quant zu registrieren, wird bestimmt durch Koeffizienten A_{kk}, welche die Stärke des erzeugten Alignments beschreiben, multipliziert mit Legendre-Polynomen zur Kennzeichnung der räumlichen Geometrie

$$W(\theta) = \sum_k A_{kk} P_k(\cos\theta) \qquad k=0,2,4,\ldots \tag{2.16}$$

wobei der Summationsindex k aus Paritätsgründen nur gerade Werte annimmt. Die Größen A_{kk} werden festgelegt durch den Mechanismus der Kernreaktion und die Art des γ-Zerfalls.
Die zeitliche Störung dieser Winkelverteilung infolge der statischen Wechselwirkung zwischen dem Kernquadrupolmoment und dem EFG wird beschrieben durch einen zeitabhängigen Abschwächungsfaktor $G_{kk}(t)$

$$W(\theta,t) = \sum_k A_{kk} G_{kk}(t) P_k(\cos\theta) \tag{2.17}$$

der für eine polykristalline, nicht orientierte Probe und einen axialsymmetrischen EFG die Form hat

$$G_{kk}(t) = \sum_{m,m'} \begin{pmatrix} I & I & k \\ m' & -m & p \end{pmatrix}^2 \exp(-3i(m^2-m'^2)\omega_Q' t) \tag{2.18}$$

oder als Fourier-Summe geschrieben

$$G_{kk}(t) = \sum_n s_{kn} \cos(n\omega_o t) \tag{2.19}$$

wobei die Amplituden S_{kn} die Quadrate der Clebsch-Gordon-Koeffizienten sind

$$s_{kn} = \sum_{m,m'} \begin{pmatrix} I & I & k \\ m' & -m & -m'+m \end{pmatrix}^2 \qquad (2.20)$$

mit der Summationsvorschrift

$$n = \begin{cases} |m^2-m'^2| & \text{für } I : \text{ganzzahlig} \\ \frac{1}{2}|m^2-m'^2| & \text{für } I : \text{halbzahlig} \end{cases}$$

Abb. 2.1 zeigt die Form der Winkelverteilungen, wie sie für die emittierte γ-Strahlung vorliegt, betrachtet man nur die zwei Unterzustände +m und -m für (a) den ungestörten Fall (2.16) (mit $k_{max}= 2$) und den gestörten auf Grund einer (b) magnetischen und (c) elektrischen Wechselwirkung. Es ist zu sehen, daß aus einer solchen Messung das Vorzeichen der Wechselwirkung bei (c) nicht bestimmbar ist, und die Form der zeitlichen Modulation in diesem Fall weniger stark ausgeprägt ist als für (b), beide Wechselwirkungen jedoch periodisch verlaufen. Durch zeitdifferentielle Beobachtung der gestörten γ-Winkelverteilung ist es also möglich, den Betrag der Quadrupolkopplungskonstanten ν_Q (2.13) zu messen bzw. die Stärke der gesuchten elektrischen Wechselwirkung.

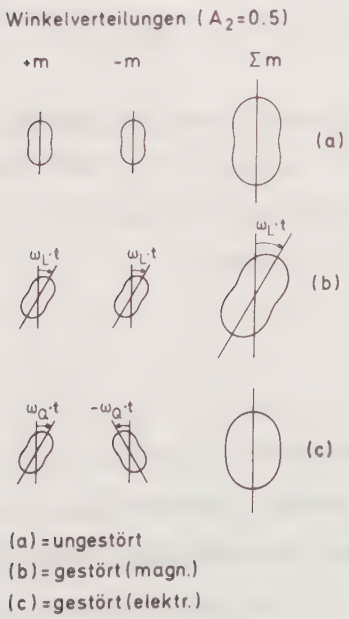


Abb. 2.1:
Formen der γ-Winkelverteilung bei Berücksichtigung von zwei Unterzuständen +m und -m: (a) ungestörte Verteilung, (b) Präzession mit der Larmorfrequenz ω_L infolge einer magnetischen Wechselwirkung, (c) Abschwächung durch die Wechselwirkung mit einem elektrischen Feldgradienten.

Die Form des Störfaktors $G_{kk}(t)$ (2.18) kann sich ändern, wenn

(a) die untersuchte Probe nicht polykristallin ist, sondern einen Einkristall bildet: Dabei ändern sich lediglich die Amplitudenfaktoren (2.20) zu den einzelnen Frequenzen $n\omega_o$ in Abhängigkeit von der Orientierung des Kristalls. Die explizite Form ist im Anhang A1 zu finden.

(b) Der EFG ist nicht mehr, wie bisher angenommen, axialsymmetrisch: Dadurch wird zur Beschreibung des Tensors für den Feldgradienten eine zweite freie Variable notwendig, der Asymmetrieparameter η

$$\eta \equiv (V_{xx}(0)-V_{yy}(0))/V_{zz}(0) \qquad (2.21)$$

für dessen Wertebereich gilt $0 \leq \eta \leq 1$ mit $|V_{xx}| < |V_{yy}| < |V_{zz}|$. Die Hauptachsentransformation, die auf Gl.(2.7) führt, hängt jetzt von η ab und damit auch die Energieeigenwerte (2.10a) und die auftretenden Präzessionsfrequenzen (2.14), die nicht mehr ganzzahlige Vielfache einer Grundfrequenz ω_o sind, so daß die beobachtete Intensitätsmodulation nicht mehr periodisch ist. Der Hamiltonoperator H_Q mit den Elementen

$$E_Q(m,m') = \hbar\omega_Q(3m^2-I(I+1))\cdot\delta_{m,m'}$$
$$\pm\hbar\omega_Q\cdot\frac{\eta}{2}((I\mp m-1)(I\mp m)(I\pm m+1)(I\pm m+2))^{1/2}\cdot\delta_{m,m'\pm 2} \qquad (2.22)$$

ist nicht diagonal in der Quantisierung nach Eigenwerten zum Operator I_z, solange $\eta \neq 0$ ist. Um den Abschwächungsfaktor zu erhalten, muß der Hamiltonoperator mittels einer unitären Matrix U diagonalisiert werden

$$U\, H_Q\, U^{-1} = E_Q(n)$$

(In diesem Fall ist m keine gute Quantenzahl mehr und n der Eigenwert zum Operator $I_{\hat{z}}$ zur neuen Achse $\hat{z}$).
Für eine polykristalline Probe tritt an Stelle von (2.19) der Faktor

$$G_{kk}(t,\eta) = \sum_n F_{kn}(\eta)\ \cos(f_{kn}(\eta)\omega_o t) \qquad (2.23)$$

wobei zur Bestimmung der F_{kn} und f_{kn} für jeden neuen Wert von η eine erneute Diagonalisierung des Hamiltonoperators notwendig ist.

Neben der Störfunktion $G_{kk}(t)$, welche die statische Wechselwirkung beschreibt, kann eine Ausschmierung der Winkelverteilung (2.17) durch zusätzliche Mechanismen erfolgen.

(c) Hat der EFG durch Störungen im Gitter keinen wohldefinierten, scharfen Wert, so daß die einzelnen Sonden Feldgradienten unterschiedlicher Größe sehen, resultiert das in einer Verschmierung der Wechselwirkungsfrequenzen. Unter Annahme einer speziellen Verteilungsfunktion $P(\omega)$ mit einer relativen Weite $\delta = \Delta\omega/\omega_o$ um den Mittelwert ω_o, läßt sich ein über die einzelnen Frequenzen gemittelter Abschwächungsfaktor $\overline{G_{kk}}(\omega_o t)$ berechnen (MSS 63). Setzt man für $P(\omega)$ eine Gaußverteilung an

$$P(\omega)\ d\omega = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\,\delta_G\omega_o} \exp\left(-\frac{1}{2}\,\frac{(\omega_o-\omega)^2}{(\delta_G\omega_o)^2}\right)\ d\omega \qquad (2.24)$$

so wird aus (2.19)

$$\overline{G_{kk}}(t) = \sum_n s_{kn} \exp\left(-\tfrac{1}{2}(\delta_G n\omega_o t)^2\right)\ \cos(n\omega_o t) \qquad (2.25)$$

und unter Annahme einer Lorentzverteilung

$$P(\omega)\ d\omega = \frac{\delta_L\omega_o}{\pi}\,\frac{1}{(\delta_L\omega_o)^2+(\omega_o-\omega)^2} \qquad (2.26)$$

$$\overline{G_{kk}}(t) = \sum_n s_{kn} \exp(-\delta_L n\omega_o t)\ \cos(n\omega_o t) \qquad (2.27)$$

Wie stark sich diese Frequenzverteilung als zeitliche Abschwächung auswirkt, ist aus Modellrechnungen im Abschnitt 5.1.2 zu ersehen (vgl. Abb.5.1a und b).

(d) Eine zeitabhängige Wechselwirkung existiert zusätzlich zwischen dem Quadrupolmoment und der Kernumgebung: Nach Abragam und Pound (ABP 53) ergibt sich für den Fall, daß die Störungen zeitlich schnell fluktuieren, ein gemittelter Abschwächungskoeffizient

$$\overline{G_{kk}}(t) = \sum_k \exp(-\lambda_k t)\ G_{kk}(t) \qquad (2.28)$$

wobei $G_{kk}(t)$ die vorher diskutierte Form haben kann und der Exponent λ_k die mittlere Stärke der fluktuierenden Wechselwirkung mit einem sich innerhalb einer Korrelationszeit τ_c ändernden Feldgradienten beschreibt

$$\lambda_k = C(k) \cdot \langle \overline{\omega_Q^2} \rangle \cdot \tau_c \quad \text{mit}$$

$$\langle \overline{\omega_Q^2} \rangle = \left(\frac{eQ}{4I(2I-1)\hbar}\right)^2 \cdot \langle \overline{V_{zz}(0)^2} \rangle \qquad (2.29)$$

und der Nebenbedingung, daß die Anzahl der Mittlungen groß ist und $\sqrt{\langle \overline{\omega_Q^2} \rangle} \cdot \tau_c \ll 1$. Diese Art der Störung kann die Anisotropie bis auf Null abschwächen, während die vorher diskutierten Annahmen (a) - (c) jeweils einen sogenannten "hard-core" Wert für die Anisotropie übrig lassen.

In Tab.4.5 (S.56) werden die eben diskutierten Abschwächungsfunktionen $G_{kk}(t)$ [1)] noch einmal zusammengefaßt, mit denen bei der Durchführung des Experimentes zu rechnen ist. Während die ersten drei Funktionen direkt die statische Störung der Anisotropie auf Grund der Quadrupolwechselwirkung beschreiben und somit erwünscht sind, können in Verbindung damit zusätzliche Schwächungen der Anisotropie auftreten, die eine Extraktion der gesuchten Präzessionsfrequenz ω_o behindern. Daneben besteht die Möglichkeit, daß von den Kernen mehr als eine Wechselwirkung gesehen wird, so daß eine Summe mit zwei oder mehr $G_{kk}(t)$-Faktoren in Gl.(2.17) angesetzt werden muß. Dadurch, wie auch schon durch die zusätzlichen Funktionen (4) - (6), steigt die Zahl der freien Parameter beträchtlich an, wobei durch die

1) in den folgenden Kapiteln zitiert als $G_k(t)$, da sie sich in der Hauptsache auf polykristalline Proben beziehen wird.

stärkere Korrelation der Parameter untereinander die gesuchten Wechselwirkungsstärken nur mit entsprechend größerer Unsicherheit aus den Meßergebnissen gewonnen werden. Forker zeigt zum Beispiel, daß zwischen dem Asymmetrieparameter η und der Frequenzverteilung, hier durch δ beschrieben, eine starke Korrelation besteht, die zu falschen Analysen bezüglich dieser beiden Parameter führen kann (FOR 73).
Ein weiteres Problem stellt die Wahl unter den drei Formen (1) - (3) für $G_{kk}(t)$ bei der Analyse von Meßergebnissen, wenn nur ein Bruchteil einer Periode sichtbar ist. Kann die Entscheidung nicht physikalisch motiviert werden (z.B. zwischen (1) und (3)), so vergrößert sich auch hier entsprechend die Unsicherheit für die gesuchten Parameter auf Grund der verschiedenen möglichen Funktionen.

2.3 Meßaufbau und Meßtechnik

Die Durchführung des Experimentes läßt sich in vier Abschnitte aufteilen:

- Kernphysikalische Präparation der Meßsonde, sie geschieht mit Hilfe des Beschleunigers, erzeugt den isomeren Kernzustand (gekennzeichnet durch τ, I^{π}, Q), die Ausrichtung der Kernspins I und stellt die benötigte Rückstoßenergie E_R für die Implantation zur Verfügung.
- Festkörperphysikalische Präparation der Sondenumgebung, sie findet im Schichttarget statt, wobei das erzeugte Spinalignment möglichst nur durch eine definierte statische Störung beeinflußt werden soll und alle anderen Störungen dagegen zu vernachlässigen sind.
- Nachweis der zeitlichen und räumlichen Verteilung der beim Zerfall des angeregten Kernzustandes auftretenden γ-Strahlung; er erfolgt durch Detektoren, die empfindlich sind auf die Energie der registrierten γ-Strahlung und mittels einer nachgeschalteten digitalen Elektronik die seit Erzeugung der Sonde verstrichene Zeit bestimmen können.
- Die unter einem festen Winkel Θ aufgenommene γ-Intensität

$I(\vartheta,t)$ nach Gl.(2.4) wird parallel durch Verwendung eines on-line Rechners so verarbeitet, daß während der Messung die gesuchte Störfunktion $G_k(t)$ extrahiert werden kann. Er ermöglicht eine bessere Überwachung und Optimierung des laufenden Experiments.

Als Beschleuniger dient der elektrostatische 7 MV Van-de-Graaff -Beschleuniger des Bereiches Kernphysik am Hahn-Meitner-Institut, Berlin. Die positiven Ionen werden in einer Hochfrequenz-Ionenquelle am Hochspannungspol des Beschleunigers erzeugt. Durch einen Gasstripper unterhalb dieses Poles kann eine weitere Ionisation der Teilchen erreicht werden, die am Ende der Beschleunigungsstrecke in einem Analysiermagneten sortiert werden nach ihrem Quotienten aus Energie und Masse. Zusätzlich kann der Ionenstrahl durch eine am Hochspannungspol befindliche 1MHz-Pulsung zeitlich moduliert werden. Der Ionenstrahl wird durch zwei magnetische Quadrupollinsen auf das Target fokussiert. Die für das Experiment benötigten α-Teilchen haben eine Energie von 12,5 MeV, die mittlere Stromstärke liegt bei 50 bis 100 nA. Durch die interne 1MHz-Pulsung werden Teilchenpakete mit der zeitlichen Pulsbreite ΔT_P von etwa 10 nsec und einem Pulsabstand T_P von 1 µsec erzeugt. Während der Messung mit ^{67}Zn als Sonde wird dieser Pulsabstand durch einen zusätzlichen elektrostatischen Deflektor auf 2 µsec erweitert. Dadurch ist eine eindeutige Zuordnung zwischen der Erzeugung der Sonde und dem nachfolgend emittierten γ-Quant möglich, da gilt $T_P >> \tau$. Die Pulsbreite ΔT_P gibt gleichzeitig eine obere Grenze für die noch auflösbare Wechselwirkungsfrequenz ω_o an (vgl. Gl.(2.15)).

Das Target befindet sich in einer dünnwandigen Kammer aus Aluminium, mit einer direkten Verbindung zum Beschleuniger-Vakuum; in der Kammer herrscht ein Druck von 10^{-5} bis 10^{-6} Torr. Das Schichttarget hat als Träger ein 0,5 mm starkes, 3×3 cm großes, planes Gold-Backing, das als Schichtenträger, Stopper für den Ionenstrahl und thermische Brücke zu einer Heiz-Kühlvorrichtung dient und eine Neigung von 45^0 zum Teilchenstrahl hat. Dazu ist das Backing auf einen Kupferrahmen geschraubt, der

durch eine Widerstandsheizung erwärmt und gleichzeitig über ein Dewar-Gefäß gekühlt werden kann. Über zwei Thermoelemente, die sich auf der Rückseite des Goldplättchens befinden, wird die Targettemperatur kontrolliert. Ihre relative Konstanz hat etwa 5 Grad betragen. Zur absoluten Temperaturmessung ist in einem Laborexperiment eine Eichung zwischen den Thermoelementen an der Target-Rückseite und einem Thermoelement, das sich auf der Target-Oberfläche befunden hat, durchgeführt worden; damit bleibt eine unbekannte Temperaturverschiebung übrig, bedingt durch die vom Ionenstrahl im Target deponierte Energie. Diese Temperaturdifferenz zwischen der Meßstelle der Thermoelemente und dem Volumenelement, in dem sich die radioaktive Sonde befindet, sollte jedoch mit zunehmender externer Heizleistung zu vernachlässigen sein. Da eine Temperaturabhängigkeit der Wechselwirkungsfrequenz zu erwarten ist, muß in erster Linie auf die relative Temperaturkonstanz geachtet werden, um eine Verschmierung des Meßeffektes zu vermeiden. Zur Verringerung der Oberflächenbelastung durch den Ionenstrahl ist der Brennfleck auf eine Fläche von etwa 2 cm^2 defokussiert worden. Dadurch verkleinert sich zusätzlich die absolute Temperaturabweichung.

Als Detektoren zum Nachweis der γ-Strahlung dienen geeignete NaJ(Tl)-Kristalle in Verbindung mit einem Photomultiplier, die unter $\theta = 0^0$ und 90^0 relativ zum Teilchenstrahl aufgestellt sind. Die nachfolgende Elektronik zur Verarbeitung des Energie- und Zeitsignals innerhalb einer standardmäßigen "fast-slow" Koinzidenz ist an anderer Stelle beschrieben worden (BHL 69): Nachdem an Hand der registrierten Energie der γ-Strahlung das isomere Niveau identifiziert worden ist, wird durch einen Vergleich die Zeit bestimmt, die seit Erzeugung des isomeren Zustandes durch den Teilchenstrahl vergangen ist. Dazu wird über ein Pick-up-Röhrchen die zeitliche Lage der Teilchenpakete relativ zum Anregungszeitpunkt bestimmt; dieses Zeitsignal startet einen TPC (Time-to-pulse-high-converter), der durch das registrierte γ-Quant wieder gestoppt wird. Somit kann die aufgenommene γ-Strahlung des jeweiligen isomeren Zusandes in Abhängigkeit von der Zeit, die zwischen Erzeugung und Zerfall dieses Zustandes verstrichen ist, in einem Vielkanalanalysator

abgespeichert werden, so daß ein Spektrum gemäß Gl.(2.4) aufgebaut wird.

Zur Zeitmessung kann an Stelle eines analogen Gerätes,wie es ein TPC darstellt,auch ein digitales Gerät, ein TDC (Time-to-digital-converter), in Verbindung mit einem on-line Rechner verwendet werden, das die Zeitdifferenz direkt in eine Binärzahl umkodiert. Über ein CAMAC-Interface wird die erzeugte Binärzahl, der ein Route-Muster als Detektor-Kennung zugeblendet wird, als Datenwort on-line in den Kernspeicher einer PDP 15/32 übertragen, wo Zeitspektren, entsprechend denen im Vielkanalanalysator, erzeugt werden. Gleichzeitig läuft auf einer niedrigeren Prioritätsebene zyklisch eine Vorauswerteroutine, welche die Zählraten der beiden Detektoren so miteinander kombiniert, daß die reine Störfunktion $G_k(t)$ auf einem Display sichtbar wird (vgl. Abschnitt 4.3). Dadurch können frühzeitig kleine Veränderungen im Zeitspektrum sichtbar gemacht werden, und es wird eine bessere Überwachung der gesamten Messung gewährleistet. Die digitale Aufnahme der Zeitspektren ermöglicht außerdem eine sofortige Fourieranalyse der Messung zur Frequenzbestimmung wie es z.B. bei Matthias und Shirley (MAS 66) für eine magnetische Wechselwirkung gezeigt wird. Die Vielzahl der auftretenden Frequenzen im Falle der elektrischen Wechselwirkung erschwert jedoch die Interpretation einer solchen Analyse.

3. Auswahl von Sonden und Matrizen

Die Möglichkeit, Hyperfeinwechselwirkungen direkt nach der Kernreaktion am Beschleunigerstrahl zu beobachten, haben mehrfach Messungen von magnetischen bzw. elektrischen Wechselwirkungen in der Vergangenheit gezeigt. Dabei ist auch die Überlagerung der statischen Wechselwirkung durch eine zeitabhängige dynamische untersucht worden, speziell als Funktion der Probentemperatur (z.B. BCM 70). So ist zu erwarten, daß der durch die Reaktion bewegte Kern auf definierten Endplätzen im Gitter zur Ruhe kommt und einer statischen Wechselwirkung ausgesetzt ist. Dieser Mechanismus sollte sich nicht ändern, wenn der rückgestoßene Kern auf seinem Weg die Grenzflächen verschiedener Schichten passiert und damit u.U. durch verschiedenartige Gitter fliegt, da infolge seiner hohen kinetischen Energie die Gitterpotentiale erst am Ende des Abbremsprozesses Einfluß auf die Sonde haben können. Durch Kombination geeigneter Schichten kann somit ein angeregter Kern auf Grund des übertragenen Linearimpulses in nahezu jeder Umgebung untersucht werden.

Durch die Wahl geeigneter Kernreaktionen ist das Isotop ^{69}Ge in den beiden nichtkubischen Metallen Zink (hexagonal) und Gallium (orthorhombisch) untersucht worden (HLM 73) und zwar über die Reaktionen ^{66}Zn(α,n) und ^{69}Ga(p,n). Weitere Variationen der Matrix lassen sich oft jedoch nur noch unter Ausnutzung der Reaktionen mit Ionen wachsender Massenzahl erreichen wie z.B. im Falle des Isotopes ^{73}As: Mittels der Reaktion ^{68}Zn(^{7}Li,2n) ist die Quadrupolwechselwirkung von ^{73}As im Zink bestimmt worden (R.E.Shroy und Mitarbeiter in KAW 74).
Für die vorliegenden Implantationsexperimente bieten sich als optimale Ionen α-Teilchen mit einer maximalen Energie von 13 MeV an. Die dadurch möglichen (α,n)-Reaktionen können Kerne im Massenbereich um A=70 mit noch hinreichendem Wirkungsquerschnitt erzeugen, ohne daß die Reaktionen vom Coulombwall (~9 MeV) allzu stark behindert werden. Experimentell hat es sich gezeigt, daß diese Reaktionen, wie allgemein (HI,xn)-Reaktionen,[1] ein hohes Alignment erzeugen (I.O.Newton in

[1] HI = Heavy Ion, x = 1,2,...

BRM 70, p.82), da hierbei ein großer Bahndrehimpulsübertrag stattfindet. Die verwendeten Sonden bzw. die bevölkerten isomeren Niveaus sollten nach Möglichkeit die folgenden Eigenschaften besitzen:

(a) Bevölkerung über (α,n)-Reaktionen
(b) Möglichst großes Alignment (vgl. Abschnitt 2.2)
(c) Zerfall über eine γ-Strahlung, deren Energie größer als 511 keV ist (Annihilations-Strahlung des β^+-Zerfalles)
(d) So große Lebensdauer, daß etwa eine halbe Periode der Wechselwirkung gemessen werden kann
(e) Das Ausgangselement, an dem die Kernreaktion stattfindet, soll in einer Form vorliegen, die leicht dampfbar ist und möglichst keine eigene statische Wechselwirkung zeigt
(f) Das Ausgangselement soll in seiner natürlichen Zusammensetzung zu einem möglichst hohen Prozentsatz aus dem für die Kernreaktion benötigten Isotop bestehen.

Die Eigenschaften (a) und (b) sind bereits diskutiert worden; sie garantieren einen Transfer an hohem Linear- und Drehimpuls auf die Targetatome. Allerdings kann durch Bevölkerung höher liegender Niveaus im Endkern und deren nachfolgenden Zerfall durchaus eine Schwächung oder Zerstörung des ursprünglich großen Alignments bewirkt werden. Daneben ist zu erwarten, daß bei der Implantation ein Teil der Rückstoßkerne nicht das Gastgitter erreicht bzw. keiner eindeutigen Wechselwirkung ausgesetzt wird, so daß eine a priori Schwächung des Alignments auftritt. Durch (α,n)-Reaktionen mit Atomen der Reaktions- und der Gastmatrix werden neutronendefiziente Kerne gebildet, die infolge ihres β^+-Zerfalles Annihilationsstrahlung von 511 keV emittieren. Eine Energiediskriminierung gegen γ-Strahlung mit Energien kleiner als die zu detektierende ist jedoch leichter als im umgekehrten Fall, so daß (c) eine erwünschte Kerneigenschaft darstellt, während (d) einen Teil der Bedingungen zur Anwendung der DPAD-Methode bildet. Daneben zeigt die Form der G_k-Faktoren, daß gerade im Falle von Quadrupolwechselwirkungen die Beobachtung von mindestens einer halben Modulationsperiode zur eindeutigen Identifizierung notwendig ist. Die Eigenschaften (e) und (f) beziehen sich dagegen auf die Target-Technologie, während die zweite Forderung von (e)

nahe liegt für die Analyse der Meßergebnisse.

Die beiden Sondenkerne ^{67}Zn und ^{67}Ge kommen diesen Anforderungen recht nahe. An beiden Sonden sind bereits magnetische (BLM 73, Bertschat und Mitarbeiter in HOS 73) und elektrische Wechselwirkungen (BRS 74, HLM 73), hier für beide in Zink, gemessen worden. Tab.3.1 charakterisiert die Sonden und zeigt, daß unter Berücksichtigung aller Eigenschaften beide etwa gleichwertig sind. Im ersten Teil der Tabelle sind die für die Kernreaktionen relevanten Daten aufgeführt. Die auf Grundlage dieser Daten errechneten mittleren Rückstoßenergien ermöglichen für beide Sonden Implantationstiefen größer als 1000 Å. Die weiteren Daten beschreiben das jeweilige isomere Niveau des Kerns. Es ist zu beachten, daß die angegebenen Quadrupolmomente keine experimentell bestimmten Werte darstellen, sondern aus Kernmodellen abgeleitet sind (NAH 58). Damit ergeben sich die noch meßbaren Feldgradienten, setzt man voraus, daß zur Identifizierung der Wechselwirkung etwa eine halbe Periode

Tab. 3.1: Physikalische Eigenschaften der zur Implantation verwendeten Sonden (HLM 73, BLM 73)

Sonde	^{67}Ge	^{67}Zn
Ausgangsisotop	^{64}Zn	^{64}Ni
Anreicherung	48,89 %	1,08 %
Kernreaktion	α,n	α,n
Q-Wert	-9,187 MeV	-4,89 MeV
Mittlere Rückstoßenergie	700 keV	900 keV
I^{π}	$9/2^+$	$9/2^+$
$T_{1/2}$	70 nsec	333 nsec
E_γ	734 keV	605 keV
A_2-Term	>0,28	>0,22
Q-Moment	-0,25 barn[1]	-0,20 barn[1]
Noch meßbarer EFG[2]	$\geq 4 \cdot 10^{17}$ V/cm^2	$\geq 1 \cdot 10^{17}$ V/cm^2

1) Abschätzung nach (NAH 58)

2) Es gilt $V_{zz}[\mathrm{V/cm^2}] = 99{,}24 \cdot 10^{15}/(Q[\mathrm{barn}] \cdot T_o[\mu\mathrm{sec}])$; dabei ist angenommen worden $T_o \leq 14 \cdot T_{1/2}$, wenn T_o die Modulationsperiode ist.

$T_o = 2\pi/\omega_o$ auf 7 Halbwertszeiten benötigt wird; die so abgeschätzten EFG liegen gerade in der Größenordnung von $10^{17} V/cm^2$, wie sie in den nichtkubischen Metallmatrizen zu erwarten sind.

Mit Hilfe dieser Sonden sollen die Wechselwirkungen in den nichtkubischen s-p Metallen Kadmium, Indium, Zinn und Antimon untersucht werden. Zusammen mit den für ^{67}Ge bekannten Wechselwirkungsstärken in Zink und Gallium sowie den in diesen Matrizen zahlreichen experimentellen Literaturdaten ist ein systematischer Vergleich der gemessenen Wechselwirkungen möglich; die Valenzdifferenz ΔZ variiert dabei von -1 für Sb bis +3 für Zink bzw. Kadmium. Die Messungen mit der ^{67}Zn-Sonde in Kadmium stellen zum einen den Beginn für weitere Untersuchungen dar, die Vergleiche mit der elektronisch ähnlichen Sonde ^{111}Cd ermöglichen; gleichzeitig sind mit dieser Messung alle vier Quadrupolkopplungskonstanten für das System Zn-Cd bekannt. Die benötigten Substanzen sind - notfalls in ihren entsprechenden Verbindungen - in definierten Schichtdicken dampfbar und lassen sich polykristallin niederschlagen. Auf die Präparation dieser Matrizen in Zusammenhang mit den Reaktionsschichten wird in Abschnitt 4.2 eingegangen werden.

4. Rückstoßimplantation

Für die folgenden Untersuchungen wird der nach Kernreaktionen auf die Sonde übertragene lineare Impuls dazu ausgenutzt, die Sonde aus ihrer ursprünglichen Matrix, der Reaktionsmatrix, definiert in ein neues Gitter, die Gastmatrix, zu implantieren. Dazu muß geklärt werden, wie groß die Reichweite für Ionen im Festkörper in Abhängigkeit von ihrer kinetischen Energie ist (Abschnitt 4.1), um eine Aussage über den Prozentsatz der Sondenkerne zu erhalten, die in der ersten Matrix erzeugt und in der zweiten Matrix abgebremst werden. Dabei zeigt es sich, daß ein Target benötigt wird, welches aus einer Vielzahl einzelner Schichten von je 1000 - 2000 Å Dicke besteht. Diese müssen gegenüber dem auftreffenden Beschleunigungsstrahl stabil und reproduzierbar in definierten Strukturen herzustellen sein (Abschnitt 4.2). Inwieweit sich solche Mehrschichten-Targets als brauchbar erweisen zur Untersuchung von elektrischen Quadrupolwechselwirkungen in nichtkubischen Matrizen, soll der letzte Abschnitt (4.3) dieses Kapitels zeigen. Es wird aus den aufgenommenen Meßdaten der physikalisch relevante Störfaktor $G_k(t)$ extrahiert, so daß die zeitliche Modulation des erzeugten Alignments unter dem Einfluß der Hyperfeinwechselwirkung diskutiert werden kann.

4.1 Implantationsrate und Energie-Reichweite Beziehung

Zur Klärung dieser Fragen ist die Wechselwirkung geladener Teilchen beim Durchqueren von Materie zu betrachten. Es müssen in diesem Fall zwei Gruppen von Teilchen unterschieden werden: Die Ionen aus dem Beschleunigerstrahl, deren kinetische Energie bei 10 MeV liegt, und die erzeugten Reaktionsprodukte mit Energien um 700 keV. Der Energieverlust und damit die Reichweite der Teilchen wird bestimmt durch ihre elastische und inelastische Streuung sowohl an der Atomhülle als auch den Atomkernen der Bremssubstanz (daneben besteht die Möglichkeit von Kernreaktionen und Kernanregungen). Welcher

Prozess dominiert, hängt jeweils von der Geschwindigkeit des Teilchens ab, die verglichen wird mit der Orbitalgeschwindigkeit der Elektronen in der Atomhülle der Bremssubstanz bzw. in der des bewegten Teilchens.

Auf seinem Weg durch die einzelnen Targetschichten wird das α-Teilchen abgebremst, so daß sich dessen Energie und damit der Wirkungsquerschnitt für die betrachtete Kernreaktion in Abhängigkeit vom Reaktionsort ändert; gleichzeitig wird die Reaktionskinematik variiert, welche die Rückstoßenergien und Winkelverteilung des Reaktionsproduktes bestimmt. Bei bekanntem Reaktionsmechanismus läßt sich die Reichweitenverteilung der Rückstoßkerne berechnen bzw. der Prozentsatz der Rückstoßkerne, welche in die Gastmatrix gelangen: Ist N_o die Zahl aller Sonden, die innerhalb einer Reaktionsschicht der Dicke D durch die (α,n)-Reaktionen entstanden sind, so besitzt die Anzahl N der Teilchen, die in der Gastmatrix zur Ruhe kommen, die folgende Abhängigkeit (vgl. Abb.4.1)

$$N/N_o = f(E_\alpha(x), \sigma(E_\alpha), Q_o, E_R(E_n, \delta), \zeta, \bar{R}(E_R, \zeta), \Delta\bar{R}, D) \quad (4.1)$$

Dabei gilt für die einzelnen Größen

- $E_\alpha(x)$ stellt die Energie des α-Teilchens längs des Weges x durch das Target dar; da sie bei 10 MeV liegt, ist das Winkelstraggling der Teilchen so klein, daß zur Beschreibung des Prozesses eine Ortskoordinate, die Targetdicke, ausreicht.
- $\sigma(E_\alpha)$ ist der Wirkungsquerschnitt für die durch das α-Teil-

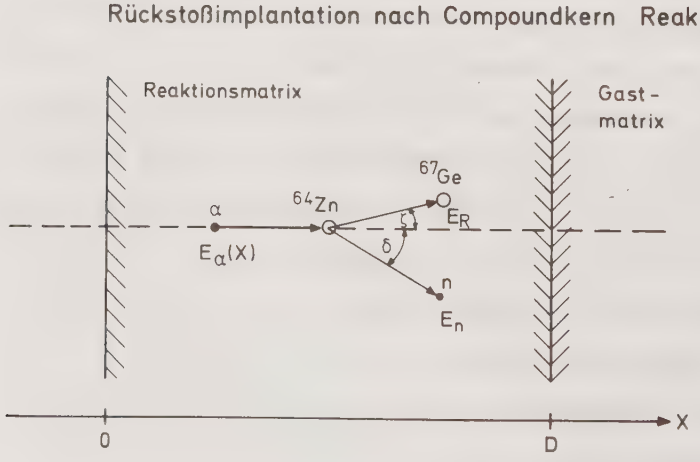


Abb. 4.1:
Skizze zur Beschreibung der Reaktionskinematik.

chen induzierte (α,n)-Kernreaktion; er wird benötigt, um eine Grenze für die integrale Dicke des Schichttargets abschätzen zu können und eine Mittelung über die Reichweiten der Reaktionsprodukte zu ermöglichen, soweit diese von der Energie der α-Teilchen abhängig sind.

- Q_o setzt sich zusammen aus der Energie, die aufgebracht werden muß, um die in der Kernreaktion auftretende Massendifferenz zwischen Target- und Endkern zu kompensieren (Q-Wert der Reaktion) und der inneren Anregungsenergie E_x des Endkerns.
- E_n und δ sind Energie und Winkel zum α-Strahl für die bei der Reaktion auslaufenden Neutronen; sie bilden für jede Reaktion eine kontinuierliche Parameterschar, welche das kinetische Verhalten der Rückstoßkerne bestimmt.
- E_R und ζ sind die entsprechenden Werte für den zu implantierenden Kern (Endkern).
- $\bar{R}$ und $\Delta\bar{R}$ sind die mittleren Reichweiten und Reichweitestreuungen dieser Kerne, welche durch eine gaußförmige Verteilungsfunktion beschrieben werden.
- D ist die effektive Schichtdicke der Reaktionsmatrix, in der die betrachteten Kernreaktionen erfolgen; in Abhängigkeit von diesem Parameter läßt sich die relative Ausbeute $A(D) = N/N_o$ an Reaktionsprodukten berechnen, die die Reaktionsmatrix verlassen.

Die Energieänderung der α-Teilchen innerhalb des Targets ergibt sich aus dem Bremsvermögen der Substanzen, welche die Reaktionsmatrix und Gastmatrix bilden. Die gesuchten Wirkungsquerschnitte $\sigma(E_\alpha)$ sind Anregungsfunktionen für die betrachteten Reaktionen zu entnehmen. Um weitere Aussagen über die Reaktionskinematik und die damit verbundenen Energien und Winkel der Reaktionsprodukte machen zu können, muß der Reaktionsmechanismus bekannt sein. Nachdem diese Parameter in Abschnitt 4.1.1 diskutiert worden sind, verbindet Abschnitt 4.1.2 über Energie-Reichweite Beziehungen die so erhaltene Energie- und Winkelverteilung der Rückstoßkerne mit den entsprechenden Reichweitenverteilungen in den verschiedenen Substanzen. Die numerische Berechnung der relativen Ausbeute A(D) wird im letzten

Abschnitt (4.1.3) beschrieben neben einer Abschätzung für die benötigte Dicke der Gastmatrix, um den Rückstoßkern dort abzubremsen.

4.1.1 Wechselwirkung der α-Teilchen im Schichttarget und Reaktionskinematik

Für die einzelnen Experimente stehen α-Teilchen mit einer maximalen Energie von 12,5 MeV zur Verfügung, so daß die Kernreaktionen zur Erzeugung der ^{67}Ge- und ^{67}Zn-Sonde im günstigsten Fall etwa 2 MeV oberhalb des Q-Wertes bzw. des Coulombwalls erfolgen können. Die Geschwindigkeit der Geschoßteilchen ist in allen Fällen groß gegen die Orbitalgeschwindigkeit der Elektronen des Bremsmediums, wodurch die Wechselwirkung und damit der Energieverlust ausschließlich durch inelastische Streuung an den Hüllenelektronen (Anregung, Ionisation) erfolgt. Die Daten für das Bremsvermögen aus den Tabellen von Northcliffe und Schilling (NOS 70) bestimmen den Energieverlust in Abhängigkeit von der durchdrungenen Schichtdicke und dem Bremsmedium. Benötigt werden die Werte für die Reaktionsmatrizen, bestehend aus den Verbindungen ZnS oder Ni-Chelat, und die Gastmatrizen, bestehend aus den Elementen Ga, Cd, In, Sn, Sb, sowie Au, das als Schutzschicht dienen soll. Im Falle der Gast-

Tab. 4.1: Bremsvermögen S für α-Teilchen bei zwei verschiedenen Energien E_α nach Northcliffe und Schilling (NOS 70)

Substanz	E_α [MeV]	S [MeV/(mg/cm²)]	D [µg/cm²]	S_D [keV/D]
ZnS	10,00	0,311	70	21,8
	12,81	0,264		18,5
$Ni(C_5H_7O_2)_2$	10,00	0,478	40	20,0
	12,81	0,395		16,0
Ga	10,00	0,281	120	33,7
	12,81	0,241		36,2
In	10,00	0,223	120	26,8
	12,81	0,190		22,8
Au	10,00	0,163	150	24,5
	12,81	0,142		21,3

matrizen können stellvertretend für alle Elemente die Daten für In eingesetzt werden, nur die Ga-Matrix wird gesondert berücksichtigt. Die dadurch entstandenen Fehler sind im Bereich von 1 - 2 % und sind gegenüber anderen Fehlerquellen zu vernachlässigen. Das Bremsvermögen S_M für die Verbindungen, welche die Reaktionsschichten bilden, wird nach der Formel $S_M = 1/M \sum_i N_i A_i S_i$ (mit $M = \sum_i A_i$) berechnet, wobei S_i das Bremsvermögen des i-ten Elementes mit dem Atomgewicht A_i ist, dessen relativer Anteil zur Verbindung $N_i A_i/M$ beträgt. In Tab.4.1 sind die Daten für das Bremsvermögen S bei zwei verschiedenen Energien aufgeführt. In der letzten Spalte ist zusätzlich der Energieverlust pro Schichtdicke D angegeben, die sich aus den Berechnungen der Reichweiteverteilungen in Abschnitt 4.1.3 ergeben wird. Diese Werte zeigen, daß sich innerhalb einer Reaktionsschicht die Teilchenenergie so wenig ändert, daß sie für jede einzelne Schicht als konstant angenommen werden kann.

Bevor auf die Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte $\sigma(E_\alpha)$ näher eingegangen werden soll, kann für beide Reaktionen festgestellt werden, daß sie weit unterhalb des Maximums für eine (α,n)-Reaktion verlaufen, das in dieser Massengegend etwa bei 16 MeV zu erwarten ist, so daß mit einer starken Energieabhängigkeit für σ zu rechnen ist. Daneben ist zu klären, ob die Kernreaktion als Direkte oder Compoundkern Reaktion abläuft: Infolge der Energieverschmierung des Teilchenstrahls, die durch den Energieverlust im Target noch vergrößert wird, ist es wahrscheinlich, daß eventuell vorhandene Resonanzen für Direkte Reaktionen ausgeschmiert werden. Diese Annahme wird bestätigt durch Messungen von Ruddy und Pate (RUP 69), die den Compoundkern $^{64}Zn+\alpha$ bei Energien zwischen 6 und 38 MeV untersucht haben. Durch Messen der Reichweiten der Endprodukte zeigen sie, daß der so bestimmte Impulsübertrag konsistent mit dem Compoundkern-Mechanismus ist. Allerdings berichten Hazan und Blann (HAB 65), daß diese Methode nur sensitiv auf Direkte Reaktionen ist mit einem Anteil größer als 25 %. Daneben lassen sich aber auch die gemessenen Anregungsfunktionen mit entsprechenden theoretischen Annahmen

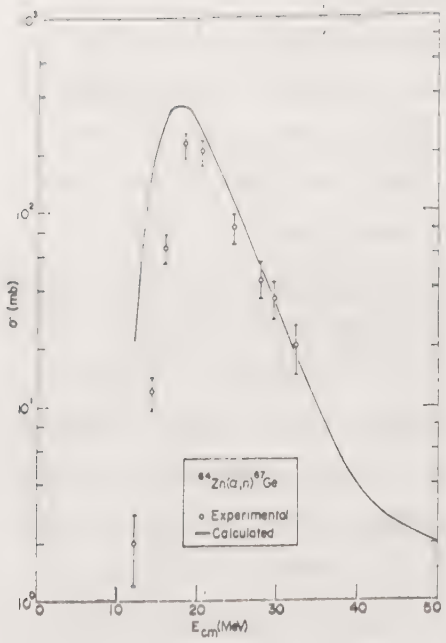


Abb. 4.2:
Vergleich der theoretischen Anregungsfunktion mit den experimentellen Daten für die Reaktion $^{64}Zn(\alpha,n)^{67}Ge$ nach (RPV 69).

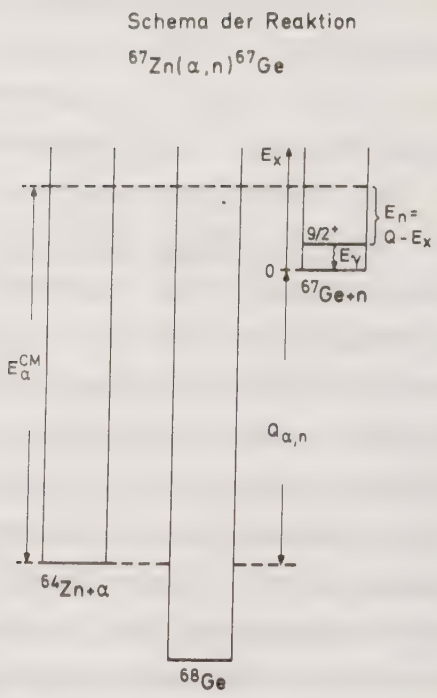


Abb. 4.3:
Skizze für die energetische Lage von Target-, Compound- und Endkern und für den möglichen Energiebereich des emittierten Neutrons im C.M. System.

über einen Compoundkern reproduzieren (RPV 69). Abb.4.2 zeigt den Vergleich zwischen Theorie und Experiment. Neuere Messungen zur Neutronenwinkelverteilung nach (α,n)-Reaktionen in der Massengegend von Titan bis Indium bei den hier betrachteten Energien (HSH 74) bestätigen, daß sicherlich beide Sonden über einen Compoundkern gebildet werden.

Entsprechend diesem Reaktionsmechanismus bilden die Systeme ^{64}Zn+α und ^{64}Ni+α im Eingangskanal für die Dauer von 10^{-17} bis 10^{-16}sec die Compoundkerne ^{68}Ge und ^{68}Zn; infolge der geringen Anregungsenergie wird nur ein Nukleon, Proton oder Neutron, beim Zerfall im Ausgangskanal emittiert, wobei das vorliegende Experiment durch Nachweis eines speziellen γ-Quants aus dem Endkern nur empfindlich auf die Emission eines Neutrons ist. Bei einem solchen Reaktionsablauf kann angenommen werden, daß der Compoundkern den gesamten Impuls des α-Teilchens auf-

nimmt, so daß die Rückstoßenergie der Endkerne ^{67}Ge bzw. ^{67}Zn in erster Näherung etwa 6 % der des α-Teilchens beträgt, ungefähr 700 keV bei E_α = 12,5 MeV. Durch Emission des Neutrons wird dieser Wert entsprechend der Reaktionskinematik um etwa 40 % vergrößert oder verkleinert. Da Targetkern und anregendes Teilchen beide keinen Spin besitzen, kann für die Compoundzustände ein vollständiges Alignment erwartet werden, wählt man die Strahlachse zur Quantisierung. Von diesem Alignment sollte im Endkern noch ein wesentlicher Anteil erhalten sein, da mit der Emission des Neutrons nur ein geringer Verlust an Bahndrehimpuls verbunden ist.

Die in Abb.4.2 gezeigte Anregungsfunktion gilt für die Bevölkerung aller Zustände im Endkern ^{67}Ge. Dennoch läßt sich aus ihr abschätzen, daß bei einem Energieverlust des α-Teilchens von 2 MeV sich der Wirkungsquerschnitt σ relativ um etwa eine Größenordnung ändern wird. Auf Grund des etwas günstigeren Q-Wertes für die ^{67}Zn-Sonde sollte die Änderung in diesem Fall nicht ganz so stark sein.
Der Bereich der möglichen Neutronenenergien ist am Beispiel der Reaktion ^{64}Zn(α,n)^{67}Ge in Abb.4.3 skizziert: Durch den hohen negativen Q-Wert der Reaktion relativ zur Einschußenergie und die Randbedingung, daß der Endkern eine Anregungsenergie E_x > 734 keV besitzen soll, bleibt für das Neutronenspektrum ein Bereich bis maximal 2 MeV; für den Endkern ^{67}Zn verschiebt sich diese Grenze bis auf etwa 5 MeV. Hazan und Blann (HAB 65) zeigen, daß die Annahme einer mittleren Neutronenenergie für entsprechende kinematische Rechnungen nur ein Fehler von rund 1 % bedeutet.
Die Winkelverteilung der Neutronen ist im Schwerpunktsystem symmetrisch um 90^0. Wie Ericson und Strutinski (ERS 58) zeigen, wächst die Anisotropie dieser Winkelverteilung mit der Anregungsenergie im Compoundkern und läßt sich beschreiben durch

$$W(\delta) \sim 1 + C \cdot \cos^2\delta \qquad (4.2)$$

wobei C bei maximal 0,1 liegen sollte in Übereinstimmung mit den Messungen von Hille und Mitarbeitern (HSH 74).

In Tab.4.2 sind für beide Kernreaktionen für je zwei Energien der α-Teilchen der Bereich der auftretenden Rückstoßenergien sowie der maximale Rückstoßwinkel ζ_{Max} des Endkerns aufgeführt. Ein Anstieg der vorgegebenen Anregungsenergie E_x im Endkern, entsprechend einer Abnahme der Neutronenenergie, ist verbunden mit einer leichten Abnahme der mittleren Rückstoßenergie und einer Verkleinerung des maximalen Rückstoßwinkels, zwei Effekte, die sich zum Teil gegenseitig kompensieren.

4.1.2 Energieverlust und Reichweiteverteilung der Rückstoßkerne

Während die α-Teilchen ihre Energie nahezu kontinuierlich durch Wechselwirkung mit den Hüllenelektronen der sie umgebenden Materie verlieren, bevor sie endgültig im Target-Backing gestoppt werden, findet dieser Prozeß für die Rückstoßkerne auf Grund ihrer Geschwindigkeit gerade in einem Grenzbereich für zwei verschiedene Abbremsmechanismen statt. Dieses Gebiet ist physikalisch bestimmt durch die Kreisgeschwindigkeit für das

Tab. 4.2: Reaktionskinematik und Rückstoßenergien für die betrachteten Compoundkern Reaktionen. Nach Vorgabe der Einschußenergie E_α, des Neutronenwinkels δ und der Anregungsenergie E_x des Endkerns werden die entsprechenden Rückstoßenergien E_R und Winkel ζ berechnet. ζ_{Max} ist die größte auftretende Winkelabweichung.

Reaktion	E_α [MeV] Lab.	C.M.	E_x [MeV]	E_R [MeV] von	bis	ζ_{Max}
$^{64}Zn(\alpha,n)^{67}Ge$ Q=-9,187 MeV	12,5	11,8	0,73	0,47	1,03	±11,3°
			2,10	0,58	0,89	± 6,4°
	11,0	10,4	0,73	0,51	0,78	± 6,1°
$^{64}Ni(\alpha,n)^{67}Zn$ Q=-4,900 MeV	12,5	11,8	0,61	0,31	1,33	±21,0°
			5,90	0,51	0,98	± 9,4°
	10,5	9,9	0,61	0,28	1,07	±19,1°
			3,50	0,39	0,88	±11,7°

Elektron eines H-Atoms, $v_o = e^2/\hbar = 2{,}2 \cdot 10^8$cm/sec (ein Ge-Kern dieser Geschwindigkeit besitzt eine kinetische Energie von etwa 1,7 MeV). Hiermit ist die Geschwindigkeit der Rückstoßteilchen v zu vergleichen: Ist $v > v_o$, so können Anregung und Ionisation der Atomelektronen erfolgen (wie bei den α-Teilchen); diese inelastischen Streuungen werden durch das elektronische Bremsvermögen S_e berücksichtigt. Ist dagegen $v << v_o$, so kann das abzubremsende Teilchen als nahezu neutral betrachtet werden, das seine Energie nur noch über elastische Stöße mit den abgeschirmten Atomkernen verliert; dieser Vorgang wird durch das nukleare Bremsvermögen S_n beschrieben. Es können hierbei große Winkelstreuungen für das bewegte Teilchen auftreten, je nach dem Massenverhältnis zwischen gestreutem und streuendem Atom. Der Bereich beginnt etwa bei 100 keV und reicht hinab bis 25 eV, der Energie, die nötig ist, um ein Atom von seinem Gitterplatz zu entfernen. Das Bremsvermögen S läßt sich dann darstellen als Summe beider Prozesse, mit dem elektronischen Anteil als Korrekturglied. Für den mittleren Energieverlust dE des bewegten Teilchens längs einer Wegstrekke dR kann definiert werden

$$\frac{dE}{dR} \equiv S = N \int d\sigma \cdot T \qquad (4.3)$$

wobei N die Anzahl der Streuzentren pro Volumeneinheit ist und $d\sigma$ der differentielle Wirkungsquerschnitt für eine Energieübertragung der Größe T an Atome oder Hüllenelektronen (vgl. hierzu z.B. LSS 63). Die Reichweitenverteilung R(E) ergibt sich durch Integration über die kinetische Energie E des abgebremsten Teilchens

$$R(E) = \int_0^E \frac{dE'}{(dE'/dR)} = \int_0^E \frac{dE'}{S(E')} \qquad (4.4)$$

Analog, jedoch nicht so einfach, ist die mittlere quadratische Reichweitestreuung $\overline{(\Delta R(E))^2}$ zu berechnen. Nimmt man an, daß die Streuung um die mittlere Reichweite R(E) einer Gaußverteilung entspricht und nur durch die atomare Streuung bestimmt ist, so läßt sich für einzelne Wechselwirkungspotentiale zeigen, daß die relative quadratische Reichweitestreuung unabhän-

gig von der Reichweite eine Konstante wird. Eine andere Möglichkeit, die gesuchte Streuung zu finden, besteht in der Durchführung von Monte-Carlo-Rechnungen, bei denen man jeden diskreten Abbremsvorgang einzeln berücksichtigt und dann über eine Vielzahl solcher Ereignisse mittelt (JOG 66).

Zentrale Größe für alle Rechnungen ist der differentielle Wirkungsquerschnitt $d\sigma$, der - betrachtet man im folgenden nur den dominierenden elastischen Anteil - eine Funktion des Stoßparameters und des Streuwinkels ist; diese Abhängigkeit läßt sich im Rahmen der klassischen Mechanik beschreiben (GOL 63), setzt jedoch die Kenntnis der interatomaren Potentiale zwischen dem bewegten Teilchen und den Gitterbausteinen voraus. Dabei kann das Problem auf geschwindigkeitsunabhängige Zweikörper-Potentiale zurückgeführt werden, wenn man nur binäre Stöße annimmt, bei denen der nächste Stoßpartner weit entfernt ist. Dieses vereinfachte Bild trifft für den Energiebereich unterhalb 100 keV gut zu, wenn die Stöße nahe den einzelnen Gitterbausteinen stattfinden und nicht dem Einfluß des nächsten Nachbarn ausgesetzt sind (NIL 66). Die verschiedenen theoretischen Ansätze, welche den Abbremsvorgang der Teilchen beschreiben, unterscheiden sich daher auch gerade in der Wahl dieser Potentiale. Um ein Maß für die Genauigkeit der berechneten Reichweiten zu haben, ist es daher sinnvoll, sowohl die einzelnen Potential-Ansätze als auch die daraus resultierenden Reichweiten, soweit es möglich ist, mit den experimentell bestimmten zu vergleichen (vgl. NIL 66).

Um eine möglichst allgemeine Behandlung des Abbremsvorganges für alle gestreuten Teilchen mit der Ordnungszahl Z_1 und der Masse M_1 sowie streuenden Atome, gekennzeichnet durch Z_2 und M_2, zu gewährleisten, benutzten Lindhard und Mitarbeiter (LIS 61, LSS 63, LNS 68) ein Coulomb-Potential mit einer universellen Thomas-Fermi Abschirmfunktion $\phi(r/a)$, so daß die Potentiale zwischen zwei beliebigen streuenden Atomen immer ähnlich bleiben

$$V(r) \sim Z_1 Z_2 e^2/r \cdot \phi(r/a)$$

$$a = 0{,}8853 \cdot a_o (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{-1/2} \qquad (4.5)$$

wobei e die Elektronenladung ist und der Parameter a in Einheiten des 1. Bohrschen Radius a_o ($= \hbar^2/me^2 = 0{,}529$ Å) den Abschirmradius für das Coulomb-Feld des Kerns bestimmt. Führt man eine verallgemeinerte Energie

$$\varepsilon = \frac{a \cdot M_2}{Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)} \cdot E \qquad (4.6)$$

sowie einen entsprechenden Ausdruck für die Reichweite ein

$$\rho = 4\pi a^2 N \cdot M_1 M_2/(M_1+M_2)^2 \cdot R \qquad (4.7)$$

erhält man unabhängig von den Stoßpartnern eine Beziehung für die Energie-Reichweite Abhängigkeit. Diese neuen Koordinaten ermöglichen einen Vergleich des Bremsvermögens für die verschiedenen Abbremsmechanismen. Abb.(4.4) zeigt das elektronische Bremsvermögen S_e, das nukleare S_n für ein mit 1/R abfallendes Thomas-Fermi Potential und S_n^o für ein Potenzpotential (n = 2): Es ist sichtbar, für das letzte Potential wird das Bremsvermögen geschwindigkeitsunabhängig; außerdem deuten die Kurven an, daß sich das Integral zur Berechnung der Reichweite für den allgemeinen Ansatz nach Lindhard nicht mehr geschlossen, sondern nur noch numerisch auswerten läßt. Die Kon-

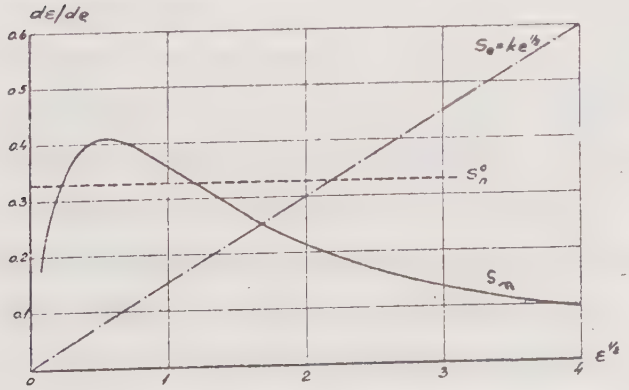


Abb. 4.4:
Theoretisches Bremsvermögen dε/dρ in verallgemeinerten Koordinaten nach (LSS 63). Die Abszisse $\varepsilon^{1/2}$ ist proportional der Geschwindigkeit v.

stante k im Ausdruck für S_e ist eine langsam mit Z_1 und Z_2 variierende Größe, die im allgemeinen einen Wert um 0,2 annimmt, solange nicht $Z_1 \ll Z_2$ gilt.

Der Ansatz für den nuklearen Anteil des Bremsvermögens behält seine Gültigkeit, solange die atomaren Stöße im abgeschirmten Feld der Atome erfolgen. Interpretiert man den Abschirmradius a in Einheiten des "collision diameter"

$$b = 2Z_1Z_2e^2/M_o v^2 \quad \text{mit} \quad M_o = M_1M_2/(M_1+M_2) \tag{4.8}$$

so zeigt sich, daß die elastische Streuung zum Energieverlust nur einen wesentlichen Beitrag leistet, solange (vgl. Abb.4.4)

$$\varepsilon = \frac{a}{b} < 1 \tag{4.9}$$

(Bei einem direkten Stoß zweier sich abstoßender Teilchen beschreibt b gerade deren maximal mögliche Annäherung.)

Für die hier betrachteten Rückstoßkerne, deren primäre Energie im Bereich zwischen 400 keV und 1200 keV liegt, wird das Bremsvermögen als Summe aus nuklearem und elektronischem Bremsvermögen angesetzt, wobei angenommen wird, daß beide Prozesse voneinander unabhängig sind:

$$S = S_n + S_e \tag{4.10}$$

Zur Auswertung des Integrals in Gl.(4.4) sind tabellierte Werte für S_n nach Biersack (BIE 64) verwendet worden, jedoch mit einem etwas von Lindhard abweichenden Ausdruck für die Abschirmkonstante a. Innerhalb des Gültigkeitsbereiches der verwendeten Theorie ist es jetzt möglich, den Energieverlust und die damit verbundene lineare Reichweite $R_L(E)$ der Rückstoßkerne zu berechnen. Für die gesuchte Schichtdicke maßgebend ist die auf die ursprüngliche Richtung projizierte Reichweite R_p, die Eindringtiefe; das Verhältnis R_L zu R_p wird im wesentlichen bestimmt durch das Massenverhältnis $\mu = M_2/M_1$

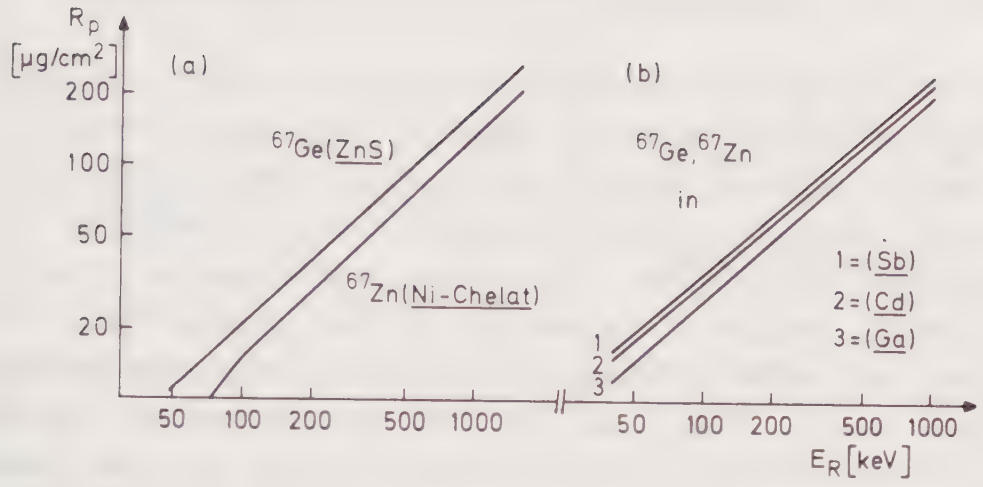


Abb. 4.5:
Reichweiten R_p der beiden Sonden in verschiedenen Substanzen als Funktion der Rückstoßenergie E_R.

$$\frac{R_L}{R_p} = 1 + \frac{1}{3}\mu \qquad (4.11)$$

solange $\mu < 1$ gilt. - Wie die "kontinuierlichen" Rechnungen zeigen auch statistische Monte-Carlo-Rechnungen, daß die Wahrscheinlichkeit für eine Streuung aus der ursprünglichen Richtung proportional μ wächst und etwa 30^0 für $\mu = 1$ beträgt.

Die berechneten Reichweiten und Reichweitestreuungen der implantierten Sonden sollten eine Genauigkeit von mindestens 20 % besitzen. Das Bremsmedium wird bei diesen Rechnungen als amorph vorausgesetzt; es ist jedoch aus Reichweitemessungen in polykristallinen Substanzen wie z.B. Al_2O_3 (JED 67) bekannt, daß die Rechnungen nach Lindhard für diese Fälle zu kleine Reichweiten und Reichweitestreuungen ergeben. In Abb.4.5 sind die projizierten Reichweiten R_p für die auftretenden Rückstoßenergien E_R in den Reaktionsmatrizen (a) sowie in den Gastmatrizen (b) zu sehen.

4.1.3 Ausbeuteberechnung der implantierten Rückstoßkerne

Mit den bis hierher diskutierten Daten ist es jetzt möglich, den Einfluß einzelner Parameter aus Gl.(4.1) zu prüfen auf die Wahrscheinlichkeit, daß ein nach einer Kernreaktion erzeugter Kern die Reaktionsmatrix verläßt und in der dahinterliegenden Matrix abgebremst wird. Diese Parameter sind zu einem Teil freie (wählbare) Parameter wie die Energie der α-Teilchen E_α und die Dicke der Reaktionsmatrix D, zum anderen Teil aber solche, deren Größe z.B. durch die Eigenschaften des Kerns bestimmt ist und die nur ungefähr bekannt sind, wie das Spektrum der Neutronenenergien E_n, die Winkelverteilung der emittierten Neutronen, beschrieben durch den Amplitudenfaktor C, und die relative Streuung der Reichweiten $\Delta\bar{R}_p/\bar{R}_p$ um den mittleren Wert $\bar{R}_p$. Es ist daher sinnvoll, diese Parameter zuerst für ein einzelnes Schichtpaar, bestehend aus einer Reaktions- und einer Gastmatrix, zu diskutieren und daraus die entsprechenden Schichtdicken D zu entnehmen.

Für einen solchen festen Parametersatz $(E_\alpha, E_n, C, \Delta\bar{R}_p/\bar{R}_p, D)$ setzt sich die mittlere Ausbeute A der aus der Reaktionsschicht explantierten Sonden zusammen aus der Summe der Einzelwahrscheinlichkeiten $F(x,\delta)$: Ein Rückstoßkern wird am Ort x erzeugt und hat den Abstand D - x zur Grenzschicht; gleichzeitig wird unter dem Winkel δ ein Neutron emittiert, das die auf den Rückstoßkern übertragene Energie E_R und dessen Winkel ζ bestimmt. Bei bekanntem $\bar{R}_p$ und $\Delta\bar{R}_p$ und unter Annahme einer Gaußverteilung für die Reichweitestreuung gilt für die auf 1 normierte Wahrscheinlichkeit einer solchen Sonde

$$F(x,\delta) = \int_{D-x}^{\infty} N\, e^{-\frac{(x'-R_c)^2}{2\Delta R_c^2}}\, dx' \qquad (4.12)$$

wobei $R_c = \bar{R}_p \cdot \cos\zeta$ und $\Delta R_c = \Delta\bar{R}_p \cdot \cos\zeta$ gesetzt worden ist (vgl. Abb.4.6 mit x' = z - x). Für die Emission eines Neutrons in den Winkelbereich δ und δ + dδ folgt dann

$$F(\delta)\, d\delta = \frac{1}{D}\int_0^D F(x,\delta)\, dx\, d\delta \qquad (4.13)$$

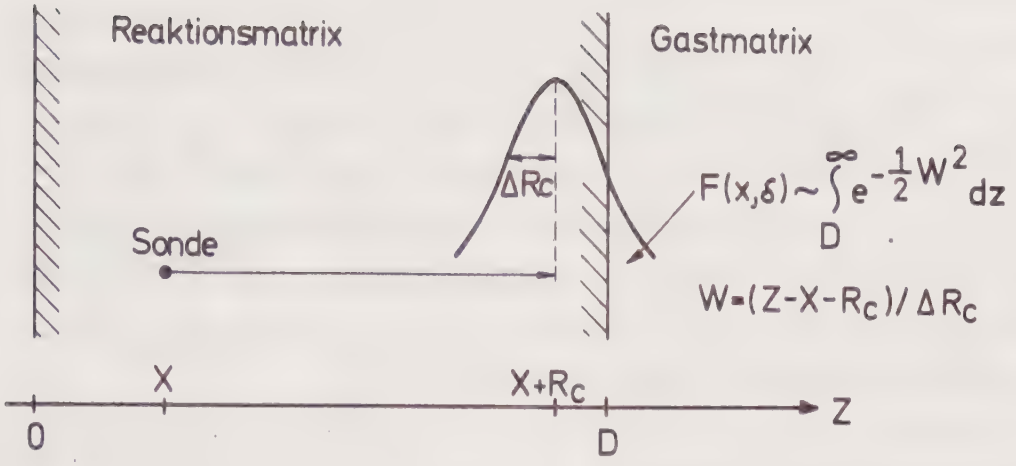


Abb. 4.6:
Zur Berechnung der Wahrscheinlichkeit F(x,δ) für die Explantation einer Sonde aus der Reaktionsmatrix in Abhängigkeit vom Reaktionsort x und dem Neutronenwinkel δ (Gl.(4.12)).

die über die Schichtdicke gemittelte Ausbeute. Es zeigt sich, daß es hinreichend ist, den Winkelbereich für δ zwischen 0^0 und 180^0 nur an wenigen diskreten Punkten δ_i zu betrachten, so daß $d\delta$ in Elemente $\Delta\delta = \frac{180}{n}$ übergeht. Eine Vergrößerung von n = 9 auf n = 36 ergibt nur eine Veränderung um 1 %, so daß n = 9 gewählt wird, um den Rechenaufwand gering zu halten. Mit Gl.(4.2) erhält man für die Wahrscheinlichkeit einer Neutronenemission in ein Winkelintervall zwischen δ und $\delta + \Delta\delta$

$$P(\delta)\ \Delta\delta = \mathcal{N}' \cdot W(\delta)\ \Delta\delta = \mathcal{N}'(1+C\cdot\cos^2\delta)\Delta\delta \qquad (4.14)$$

mit $1/\mathcal{N}' = n\cdot\Delta\delta\cdot(1+C/2)$; für die gemittelte relative Gesamtwahrscheinlichkeit zur Implantation, die Ausbeute A, in Abhängigkeit von der Schichtdicke D der Reaktionsmatrix gilt dann

$$A_p(D) = \mathcal{N}' \sum_{i=1}^{n} P(\delta_i)\ F(\delta_i)\ \Delta\delta_i \qquad (4.15)$$

wobei $p = (E_\alpha, E_n, C, \bar{R}_p/\bar{R}_p)$ den Satz der noch verbleibenden freien Parameter bildet. An Hand der Abb.4.7 - 4.9 läßt sich der Einfluß der noch freien Parameter auf die auszuwählende Schichtdicke D ablesen, wenn sie in den physikalisch vorgegebenen Grenzen variiert werden:

- E_α: (Abb.4.7) In diesem Fall ist die obere Grenze vorgegeben durch die maximale Energie des Beschleunigers, ansonsten durch die Öffnung neuer Reaktionskanäle, die den Wirkungsquerschnitt für die betrachtete Reaktion verkleinern; die untere Grenze wird durch die Coulombschwelle bzw. den Q-Wert der Reaktion gebildet, wobei die benötigte Anregungsenergie E_x zusätzlich zu berücksichtigen ist. Daraus ergibt sich für beide Sonden ein Bereich von etwa 10,5 MeV < E_α < 12,5 MeV, der für die Implantation ausgenutzt werden kann.
- E_n (E_x): (Abb.4.8b) Die Abhängigkeit der Rückstoßenergie E_R von der des emittierten Neutrons E_n ist, wie schon erwähnt, gleichwertig mit der Wahl einer bestimmten Anregungsenergie E_x' für den Rückstoßkern ($E_x' = E_\alpha^{CM} + Q - E_n^{CM}$, vgl. Abb.4.3), so daß für die Reaktionskinematik nur noch der Neutronenwinkel δ als freier Parameter übrig bleibt. Es sind also alle Anregungsenergien $E_x' > E_x$ zu betrachten. Für beide Sonden ist die energetische Lage der jeweiligen isomeren Niveaus innerhalb der benötigten Genauigkeit von einigen keV bekannt, für ^{67}Ge sollte der Zustand bei 734 keV liegen, für ^{67}Zn liegt er bei 605 keV (vgl. Tab.3.1). Durch den hohen Q-Wert im Falle des ^{67}Ge ist eine Variation des Parameters in den Grenzen 0,73 MeV < E_x' < 1,7 MeV hinreichend; dagegen ist für den Kern ^{67}Zn der obere Grenzwert wesentlich größer auf Grund des kleinen Q-Wertes, der Bevölkerungen von mehreren MeV höher liegenden Zuständen, wenigstens theoretisch, ermöglicht. Als obere Grenze werden 5,9 MeV angesetzt. Dabei wird angenommen, daß alle Anregungsenergien E_x' gleich wahrscheinlich bevölkert werden.
- C: Wie schon in Kapitel 4.1.2 diskutiert, sollte die Abweichung von der isotropen Winkelverteilung der Neutronen höchstens 10 % betragen. Vergleicht man zusätzlich die auftretenden Rückstoßenergien E_R als Funktion des Neutronenwinkels δ (Abb.4.9), so zeigt sich, daß diese Abhängigkeit durch Werte C ungleich Null infolge der vorhandenen Symmetrie um 90^{0}nur minimal beeinflußt werden kann, was innerhalb der hier betrachteten Fehlergrenzen von wenigen Prozent tatsächlich der Fall ist.
- $\Delta\bar{R}_p/\bar{R}_p$: (Abb.4.8a) Dieser Parameter, der die Breite der

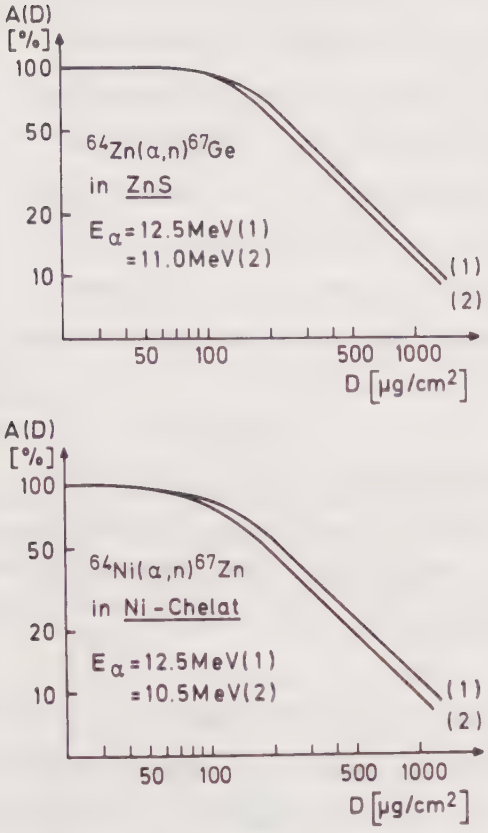


Abb. 4.7:
Relative Implantations-Ausbeute A(D) als Funktion der Schichtdicke D für verschiedene Energien E_α.

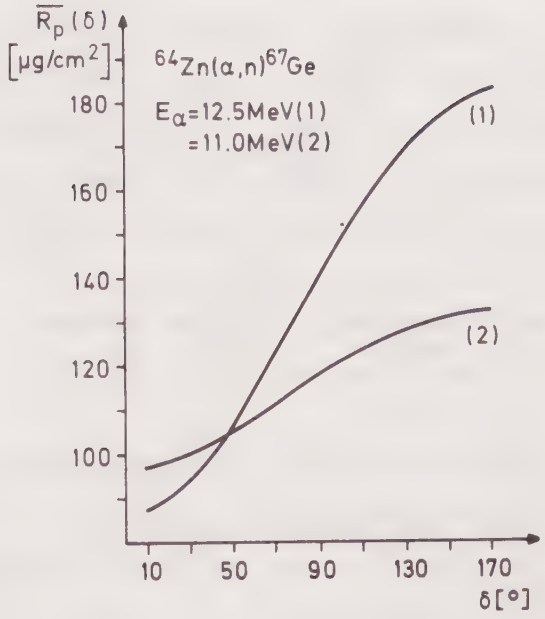


Abb. 4.9:
Mittlere Reichweite $\overline{R}_p$ des Rückstoßkerns ^{67}Ge in ZnS bei gleichzeitiger Emission eines Neutrons unter dem Winkel δ, für zwei verschiedene Energien E_α und eine feste Anregungsenergie E_x = 0,73 MeV.

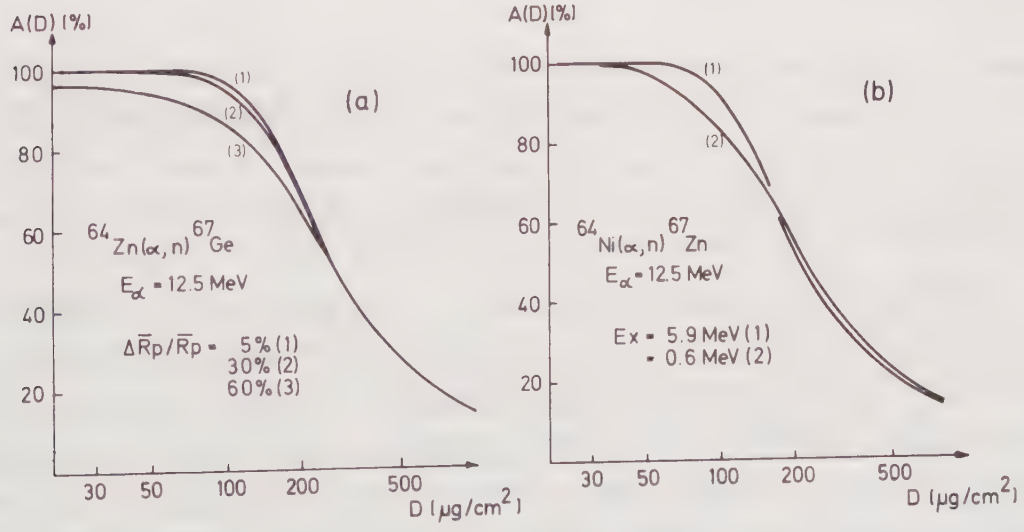


Abb. 4.8:
Relative Implantations-Ausbeute A(D) als Funktion der Schichtdicke D für verschiedene (a) Reichweitestreuungen $\Delta\overline{R}_p/\overline{R}_p$, (b) Anregungsenergien E_x im Endkern ^{67}Zn.

Gaußverteilung in der Energie-Reichweite Beziehung beschreibt, unterliegt sowohl statistischen als auch systematischen Fehlerquellen. Die Rechnung nach Lindhard läßt keine größere Genauigkeit als ±30 % hierfür erwarten; daneben muß jedoch berücksichtigt werden, daß durch die Überlagerung von elektronischer und nuklearer Streuung beim Abbremsvorgang sowie durch die polykristalline Struktur der Substanz zusätzliche systematische Fehler auftreten können. Es wird daher dieser Parameter in dem Intervall $5\ \% < \Delta\bar{R}_p/\bar{R}_p < 60\ \%$ variiert.

- D: Aus der Diskussion der einzelnen Parameter zeigt sich, daß für Schichtdicken kleiner 100 µg/cm² im Falle des ZnS(^{67}Ge) und 50 µg/cm² im Falle des ^{64}Ni-Chelat(^{67}Zn) ein Einfluß der einzelnen Parameter nur in der Prozentgegend liegt. Als gravierende Größe tritt lediglich die Reichweitestreuung $\Delta\bar{R}$ auf, deren Variationsgrenzen jedoch sehr weit gewählt worden sind. Jenseits dieser Schichtdicken zeigt sich dagegen ein starker Rückgang der zu erwartenden Ausbeute für die Explantation aus der Reaktionsschicht. Da auch die Abhängigkeit von der Energie der α-Teilchen zu vernachlässigen ist (Abb.4.7), können diese Rechnungen für 1 Schichtpaar auf das gesamte Schichttarget übertragen werden, und es entfällt die Abhängigkeit vom Wirkungsquerschnitt $\sigma(E_\alpha)$.

Mit diesen effektiven Schichtdicken für die jeweilige Reaktionsmatrix liegen ebenfalls die restlichen Daten zur Herstellung des Schichttargets fest, die Dicken der Gastmatrizen, um den Rückstoßkern zu stoppen, und die Anzahl der möglichen Schichten:

-- Die Dicke D_G der Gastmatrix läßt sich abschätzen, ersetzt man in Gl.(4.12) D durch $D + D_G$ und führt die Integration von $-\infty$ bis $D + D_G$ aus. Dabei wird angenommen, daß sich die Sonde durch ein homogenes Gemisch aus Substanzen der beiden Matrizen im Verhältnis ihrer Dicken bewegt. Für zwei Energien E_α und zwei feste Mischungsverhältnisse $D:D_G$ zeigt Abb.4.10 in Abhängigkeit von D_G den Anteil I_A der Sonden, die in der Gastmatrix abgebremst werden; infolge der Reichweitestreuungen ist mit einem Fehler von maximal ±10 % zu rechnen.

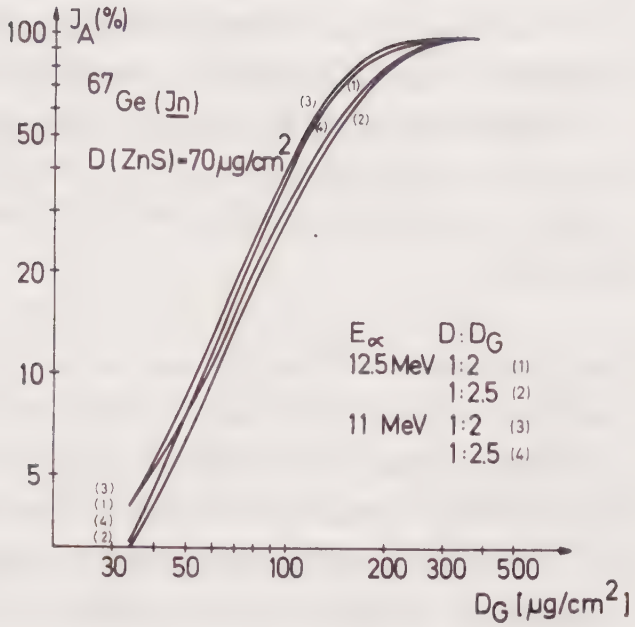


Abb. 4.10:
Relative Wahrscheinlichkeit I_A, den aus der Reaktionsschicht der Dicke D explantierten Kern ^{67}Ge innerhalb einer In-Gastmatrix der Dicke D_G abzubremsen; variiert wird die Energie E_α und das effektive Bremsvermögen, entsprechend D : D_G (vgl. Text).

-- Bei Dicken von 70 µg/cm^2 ZnS und 120 µg/cm^2 für die Gastmatrix ergibt sich aus den Werten von Tab.4.1 für einen zulässigen Energieverlust der α-Teilchen von 1,5 - 2 MeV eine Zahl von 40 Schichtpaaren im Falle der Sonde ^{67}Ge. Für die ^{67}Zn-Sonde sind die entsprechenden Werte 40 µg/cm^2 ^{64}Ni-Chelat und 200 µg/cm^2 Kadmium, so daß sich bei einem Energieverlust von 2,2 MeV eine Zahl von 40 Schichtpaaren ergibt.

4.2 Target-Präparation

Die im letzten Abschnitt diskutierten Reichweiten der Rückstoßkerne erfordern einheitlich Schichten der Dicke zwischen 1000 und 2000 Å (vgl. Tab.4.3, S.49). Zur Herstellung solcher Schichtdicken stehen eine Reihe von Verfahren zur Verfügung, wie sie unter anderem bei Maissel und Glang (MAG 70) beschrieben sind. Wird daneben jedoch noch die Forderung aufgestellt nach einer universellen Methode, die Metalle, Halbleiter und Nichtleiter auf möglichst jede Unterlage in definierten Schichtdicken abscheiden kann, erscheint das Aufdampfen im Vakuum neben der Sputter-Methode als der günstigste Weg. Die Abscheiderate liegt bei dieser Methode in der Größenordnung von 10 bis

10^3 Å/sec, während sie beim Sputtering nur 10 Å/sec beträgt. Die anderen möglichen Verfahren bieten teilweise Vorteile gegenüber dem Aufdampfen, sind dafür aber u.a. eingeschränkt auf spezielle Substanzen, die verarbeitet werden können. Ein solches Verfahren ist z.B. die Elektrolyse, mit deren Hilfe unter einfachsten Bedingungen dünne Metallschichten erzeugt werden.

Das ausgewählte Verfahren soll jedoch nicht nur möglichst substanzunabhängig sein, sondern gleichzeitig ungestörte, polykristalline Gitterstrukturen in Schichten vorgegebener Dikke garantieren, um definierte Verhältnisse für die Messung der Quadrupolwechselwirkung zu ermöglichen. Da die einzelnen Schichten im Vakuum entstehen, wird vermieden, daß sich zwischen ihnen Verunreinigungen, wie Oxyd-Filme, ausbilden können, die beim Implantieren ebenfalls in das Gastgitter gedrückt werden. Von der Möglichkeit, für die Gastmatrix gewalzte Folien zu verwenden und auf diese die Reaktionsschicht aufzudampfen ("Stack-Targets"), wie es beim Studium von magnetischen Hyperfeinwechselwirkungen oder Herstellen von PAC-Quellen an Beschleunigern üblich ist, wird hier kein Gebrauch gemacht; es ist dabei zwar der Materialverlust kleiner für die aufzudampfende Substanz, jedoch erfordert dieses Verfahren eine sorgfältige Reinigung der Folienoberfläche, und es besteht die Gefahr der Bildung von Texturen beim Herstellen der Folien, die das Interpretieren von elektrischen Hyperfeinwechselwirkungen erschweren würden (KAU 72). Daneben bereitet es zunehmende Schwierigkeiten, so dünne Folien zu walzen und zu handhaben. Durch das Dampfen beider Schichten wird zusätzlich der thermische Kontakt innerhalb des ganzen Targets erhöht, so daß die thermische Belastung, die beim Beschuß des Targets mit hochenergetischen Ionen auftritt, vermindert und damit die Lebensdauer des Targets vergrößert werden kann; wird das Schichttarget zusätzlich extern geheizt, so ist eine gleichmäßigere Temperaturverteilung in den einzelnen Schichten garantiert.

Diese Überlegungen lassen den Aufdampf-Prozeß im Vakuum als das für die Erfordernisse des Experimentes günstigste Verfah-

ren erscheinen. Das bedeutet aber, nachdem bei geeigneter Dampfgeometrie die einzelnen Schichten erzeugt worden sind (Abschnitt 4.2.1), muß danach sowohl die Kontrolle der Schichtdicken als auch der polykristallinen Struktur erfolgen (Abschnitt 4.2.2).

4.2.1 Erzeugung dünner Schichten

Der Prozeß des Aufdampfens läßt sich in drei Stadien untergliedern: den Übergang von der kondensierten Phase in die gasförmige, den Gasfluß von der Quelle zum Substrat (Backing) und die Kondensation auf dem Substrat. Entlang dieses Ablaufs sollen die experimentellen Bedingungen zur Herstellung des Targets diskutiert werden:

- Das Verdampfen der einzelnen Substanzen erfolgt in allen Fällen mittels einer Widerstandsheizung, wobei sich das zu verdampfende Material in Schiffchen aus Alsint (Al_2O_3), Tantal (Ta) oder Wolfram (W) befindet, entsprechend ihrem chemischen Verhalten beim Erhitzen. In Tab.4.3 sind die einzelnen Substan-

Tab. 4.3: Daten zur Herstellung der Schichttargets

Substanz	Gitter	ρ [g/cm^3]	D_o [Å] [2]	T [°C] Schmelzpunkt	T [°C] $p=10^{-3}$ Torr	Quellen-Material [3] offen	Quellen-Material [3] geschlossen
ZnS	-	4,08	1200	1830	900		Ta
Ni-Chelat	-	≈1,3	2200	≈200	≈250		Ta
Ga	orthorhombisch	5,91	1400	30	1010	Al_2O_3	
Cd	hexagonal	8,65	1000	321	217		Ta
In	tetragonal	7,31	1200	156	837	W	
Sn	tetragonal [1]	7,30	1200	232	1110	W	
Sb	hexagonal	6,62	1300	630	475	Al_2O_3	
Au	kubisch	19,3	800	1063	1250	W	

[1] für T > 13°C, darunter wird Sn kubisch (GME 59, Zinn, S. 130ff.)

[2] Es gilt $D_o = D \cdot \cos 45^\circ$, wobei für D die in Abschnitt 4.1.3 angegebenen Schichtdicken einzusetzen sind.

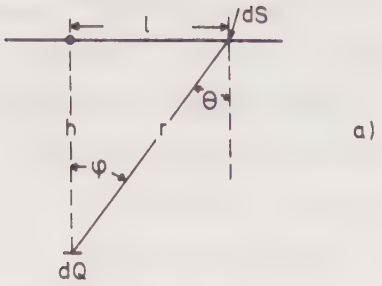
[3] Al_2O_3: Alsint, Ta: Tantal, W: Wolfram

zen aufgeführt mit ihren Schmelzpunkten und der Temperatur, die notwendig ist, um einen Dampfdruck von 10^{-3} Torr zu erzeugen. Bis auf Kadmium sind alle Elemente zur Erzeugung der Gastmatrix aus einer offenen Quelle verdampft worden. Sie besteht aus einem Blechstreifen (Ta oder W) mit einer kugelförmigen Vertiefung (Ø = 5 mm). Im Falle des Alsints ist ein Molybdän-Streifen (Mo) mit Al_2O_3 beschichtet. Da die Kadmium-Atome infolge ihres hohen Dampfdruckes beim Dampfen nur eine geringe kinetische Energie besitzen, erweist es sich als vorteilhafter, zur Erzeugung gleichmäßiger Schichten eine geschlossene Quelle zu verwenden, die ein Bedampfen des Backings von oben her erlaubt. Weil für die Reaktionsschichten keine reinen Metalle, sondern leicht dampfbare Verbindungen gewählt worden sind, werden diese beiden Substanzen ebenfalls aus geschlossenen Quellen gedampft, um ein Zersetzen der Verbindungen beim Aufheizen möglichst zu verhindern.
Während die Emissionscharakteristik für die offene Quelle sehr gut der einer Punktquelle entspricht und somit dem Cosinus-Gesetz gehorcht, weicht die der geschlossenen Quelle etwas von dieser Charakteristik ab.

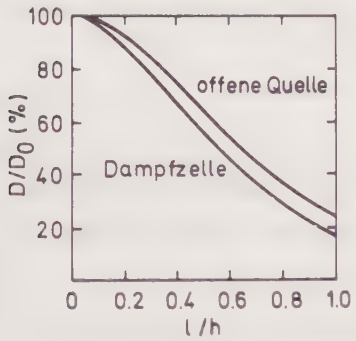
- Sind M_e und M_a die Menge der verdampfenden bzw. der absorbierten Substanz, und gilt für die emittierten Gase eine Cosinus-Verteilung, so ergibt sich für die spezifische Massenbelegung D des Backings

$$D = \frac{dM_a}{dS} = \frac{M_e}{\pi r^2} \cos\phi \cos\theta$$

wenn r die Entfernung zwischen dem Quellenelement dQ und dem Flächenelement dS ist und ϕ und Θ die Winkel zwischen deren Normalen und der Emissionsrichtung (vgl. Abb.4.11a). Für die Implantationsrate wichtig ist die relative Schwankung der Massenbelegung bzw. Schichtdicke; stehen Quelle und Backing im Abstand h parallel zueinander, so gilt $\cos\phi = \cos\Theta = h/r$, und es läßt sich die Dicke D in Abhängigkeit des Parameters l, der Entfernung zum Zentrum des Backings, darstellen, an dem die Dicke D_o beträgt. In Abb.4.11b ist die relative Schwankung D/D_o als Funktion von l dargestellt, wobei l in Einheiten des



a)



b)

Abb. 4.11:
(a) Geometrische Verhältnisse beim Dampfen der Schichttargets; dQ ist ein Element der Quellenoberfläche, dS ein Element des Backings.
(b) Relative Schwankung der Massenbelegung D/D_o auf dem Backing für zwei verschiedene Quellentypen nach (MAG 70).

Abstands Quelle - Backing gezählt wird. Typische Werte zum Dampfen der Schichttargets sind h = 11 - 13 cm und l_{max} = 1,5 cm gewesen, was einer bedampften kreisförmigen Fläche von 7 cm^2 entpricht. Die in der Abbildung eingetragenen Kurven sollten in etwa die Verhältnisse für die beiden verwendeten Quellentypen darstellen; dabei ist für die Dampfzelle, die der geschlossenen Quelle entspricht, die erwartete fokussierende Wirkung zu erkennen, ausgedrückt durch die stärkere Abnahme der Schichtdicke bei zunehmendem Abstand vom Zentrum. Auf Grund dieser Emissionscharakteristik sollten die relativen Dickeschwankungen maximal zwischen 2 bis 4 Prozent liegen.

Die Wahl von Verbindungen zum Dampfen der Reaktionsschichten entspricht zum einen Teil dampftechnischen Gründen, um den Dampfdruck zu erhöhen, wie beim Nickel, oder um das Sublimieren des Zinks zu umgehen; ein zweiter Grund besteht darin, reine Zink- und Nickelschichten innerhalb des Targets zu vermeiden, um zusätzliche Wechselwirkungen der dort gestoppten Sonden zu verhindern. Während ZnS nahezu ohne Dissoziation verdampfen sollte, ist es im Falle des Ni-Chelats ungewiß, in welcher Form diese Verbindung das Backing erreicht. Röntgenbeugungsaufnahmen der fertigen Schichttargets zeigen keine

Reflexe, die dem Zink- bzw. Nickel-Gitter zugeordnet werden können (vgl. auch Abschnitt 4.2.2). Zum Dampfen der Zinksulfid-Schichten ist industriell hergestellte Substanz verwendet worden. Dagegen ist die organische Nickel-Chelatverbindung (Nickel-Acetylacetonat = $Ni(C_5H_7O_2)_2$) speziell hergestellt worden, da in einen Acetylacetonat-Komplex isotopenreines ^{64}Ni eingebaut werden muß. Dabei wird von der Eigenschaft Gebrauch gemacht, daß nahezu alle Metalle mit Acetylaceton metallorganische Verbindungen eingehen, die sich durch einen niedrigen Schmelzpunkt auszeichnen (MEI 69).

- Die Kondensation der Dampfphase am Backing wird durch mehrere äußere Parameter beeinflußt und damit auch die Ausbildung der erwünschten Schichten sowie deren kristalline Struktur: Unter ihnen haben sich für die hier interessierenden Schichtdicken die Dampfrate und die Backingtemperatur als maßgebende Parameter erwiesen, die beide die Oberflächenmobilität der abgeschiedenen Atome beeinflussen. Daneben ist bekannt, daß "hoch-dampfende" Substanzen leichter stabile Kondensationskeime bilden als "niedrig-dampfende" wie z.B. Cd, Mg und Zn (MAG 70). Dieses Verhalten steht im Einklang mit den beim Aufdampfen gemachten Erfahrungen. Weiter ist von Bedeutung das Material, aus dem die Backingoberfläche besteht: Hierfür ist ein Backing aus Gold günstig gewesen, das zusätzlich mit einer 100 $\mu g/cm^2$ dicken Goldschicht bedampft worden ist.
Das Abscheiden der einzelnen Schichten erfolgt bei einem Grundvakuum von 10^{-6} Torr, wobei durch Schwenken der Targethalterung ohne Vakuumbruch abwechselnd die Gastmatrix und die Reaktionsmatrix aus zwei Quellen gedampft wird. Dadurch erreicht man, daß die Oberflächen der Gastmatrizen erst im Vakuum erzeugt werden. Das Gold-Backing ist wassergekühlt und auf der gleichen Temperatur gehalten wie ein neben dem Target gehaltener Schwingquarz zur Überwachung der gedampften Schichtdicken. Im Falle des Galliums ist die Kühlung zusätzlich durch ein Peltier-Element unterstützt worden, um die Kondensation zu verbessern. Die 7 cm^2 großen Dampfflächen sind zum Abschluß mit einer 150 $\mu g/cm^2$ dicken Goldschicht überzogen worden als Schutz vor Absputtern durch die auftreffenden α-Teilchen

während des Experimentes. Ein weiterer Schutz des Schichttargets ist durch seine Flächenausdehnung gewährleistet, die eine Defokussierung des Beschleunigerstrahls ermöglicht und damit eine Verringerung der Flächenbelastung.

4.2.2 Kontrolle der Schichtdicken

Nachdem qualitativ sichergestellt ist, daß sich die jeweiligen Substanzen gleichmäßig auf ihrer Unterlage abscheiden, muß quantitativ kontrolliert werden, daß sowohl die richtigen Schichtdicken als auch polykristalline Schichtstrukturen in der geforderten Weise gebildet worden sind.
Die Schichtdicken werden mittels eines mit Gold bedampften Schwingquarzes gemessen, der vor der eigentlichen Targetpräparation geeicht worden ist durch Bedampfen des Backings mit einzelnen Schichten und Vergleich zwischen Auswaage des Backings und Frequenzverstimmung des Schwingquarzes. Die dabei erzielte Genauigkeit von etwa 10 % für alle Substanzen entspricht der für die Reichweiteberechnungen in Abschnitt 4.1 und ist somit kennzeichnend für die Genauigkeit der Aussage über die Lokalisierung der Rückstoßkerne. Daneben ist das Gold-Backing vor und nach dem Aufdampfen ausgewogen worden, um sicher gegen systematische Verschiebungen der Eichung zu sein.

Nach Angaben aus der Literatur (GME 59) sollen die so gedampften Schichten, deren mittlere Dicke etwa 1300 Å beträgt, und die somit nicht mehr streng unter den Begriff der "dünnen Schichten" fallen, kristalline Strukturen ohne Vorzugsrichtung besitzen; sie sollten also polykristallin sein, wobei die einzelnen Kristalle statistisch orientiert sind. Es liegt jedoch nahe, von den angefertigten Schichten Gitterstrukturanalysen durchzuführen, um so vor allen Dingen die einwandfreie Struktur der Gastmatrizen sicherzustellen, wie sie in Tab.4.3 aufgeführt ist. Als Möglichkeit bietet sich hier die Röntgenstrahl-Beugungsanalyse (Debeye-Scherrer-Verfahren) an, wenn das Target nicht verändert werden soll. Diese Analysen sind teils an un-

Tab. 4.4: Zusammenstellung der gedampften Schichttargets

Nr.	Reaktions-matrix	µg/cm²	Gast-matrix	µg/cm²	Fehler	Schicht-paare
1	ZnS	30	Cd	100	15 %	16
2	ZnS	80	Cd	120	15 %	9
3	ZnS	50	Ga	80	10 %	40
4	ZnS	40	In	150	15 %	40
5	ZnS	50	In	80	15 %	40
6	ZnS	50	Sn	80	10 %	40
7	ZnS	50	Sb	80	10 %	40
8	Ni-Chelat	30	Cd	140	10 %	40

bestrahlten, teils an bestrahlten Schichttargets vorgenommen worden. Es ist kein Unterschied im Rahmen der Genauigkeit der Analyse festgestellt worden, und es haben alle Proben die gewünschte Struktur in Übereinstimmung mit der Literatur gezeigt. In Tab.4.4 sind die Daten für die gedampften Mehrschichten-Targets mit Fehlerangabe aufgeführt.

4.3 Ergebnisse der Messung

Von den beiden Detektoren, die unter $\Theta = 0^0$ und $\Theta = 90^0$ zum Teilchenstrahl aufgestellt sind, werden während der Messungen Zeit-Intensitätsspektren in der Form von Gl.(2.4) erzeugt

$$I(\Theta,t) = I_o \cdot e^{-t/\tau} \cdot W(\Theta,t) + U$$

Diese Abhängigkeit gilt jedoch nur für eine streng lineare Zuordnung zwischen (digitaler) Kanalzahl und der Zeit t. Da dies jedoch im allgemeinen nicht der Fall ist - wobei die zählratenabhängige Nichtlinearität des TPC eine wesentliche Fehlerquelle bildet - empfiehlt es sich, in einem ersten Schritt den Untergrund U für beide Spektren zu bestimmen, ihn abzuziehen und dann die Spektren aufeinander zu normieren durch Bilden des Verhältnisses

$$R(t) = \frac{I(0,t)-\alpha I(90,t)}{I(0,t)+\alpha I(90,t)} = \frac{W(0,t)-W(90,t)}{W(0,t)+W(90,t)} \qquad (4.16)$$

wobei α die Normierungskonstante ist, die nach Möglichkeit in der Nähe von 1 liegen sollte; damit reduziert sich die Bestimmung der Parameter I_o, τ und U für jeden Detektor auf den jeweiligen Untergrund U und den beiden Detektoren gemeinsamen Parameter α. Dadurch werden sechs freie Parameter auf drei vermindert, deren einer α gewöhnlich unproblematisch ist, während für die beiden Untergrundwerte oft ein Parametersatz angenommen werden muß, aus dem erst in einem späteren Schritt ein wahrscheinlichstes Wertpaar bestimmt werden kann.

Es hat sich in der Analyse der Spektren gezeigt, daß es hinreichend ist, in der Funktion $W(\theta,t)$ (2.17) Summanden bis $k_{max} = 2$ zu berücksichtigen. Das gemessene Zeitspektrum R(t) erhält dann die analytische Form

$$R(t) = \frac{3}{4} A_2 G_2(t) \cdot \frac{1}{1+1/4\ A_2 G_2(t)} \approx \frac{3}{4} A_2 G_2(t) \qquad (4.17)$$

Hierfür kann die "passende" Funktion F(t) gesucht werden, um die gesuchte Quadrupolkopplungskonstante ν_Q zu extrahieren. Eine falsche Bestimmung des Parameters U kann sich dabei auf das Spektrum R(t) in zweifacher Weise auswirken: das Spektrum R(t) ist so verändert,

- daß systematische Abweichungen zwischen den möglichen Funktionen $G_2(t)$ und den Meßwerten auftreten; in diesem Fall ergibt sich eine Korrekturmöglichkeit für U,
- daß ein falscher Wert für U durch einen Teil der in der Analyse noch freien Parameter kompensiert werden kann; hier kann ein falscher Wert für U nur erkannt werden, wenn die freien Parameter dabei unphysikalische Werte annehmen (z.B. negative Relaxationskonstanten in Gl. (2.28)). Parameter, die hierfür in Frage kommen, sind vor allen Dingen solche, die das Amplitudenverhalten der Funktion bestimmen. Sind sie besonders kritisch für die Analyse, so muß der Untergrund auf anderem Wege bestimmt werden.

Tab. 4.5: Elektrische Quadrupolwechselwirkungen, beschrieben durch die Funktion $G_{kk}(t) = \sum_n g^1_{kn} \cdot \cos(g^2_{kn} \cdot \omega_o t) \cdot \exp(g^3_{kn})$

Nr.	Charakterisierung der Wechselwirkung	g^1_{kn}	g^2_{kn}	g^3_{kn}
	Polykristalline Probe			
(1)	axialsymmetrischer EFG	s_{kn}	n	0
(2)	nicht-axialsymmetrischer EFG	$F_{kn}(\eta)$	$f_{kn}(\eta)$	0
	Einkristall			
(3)	axialsymmetrischer EFG	$a_{kn}(\vartheta,\varphi)$	n	0
	mit Schwächung durch Frequenzverteilung			
(4)	Gauß	Nr. (1) - (3)		$-\frac{1}{2}(\delta_G n\omega_o t)^2$
(5)	Lorentz			$-\delta_L n\omega_o t$
(6)	zeitabhängige Störung			$-\lambda_k t$

Tab. 4.6: Zusammenstellung der zur Anpassung an die Meßwerte verwendeten Funktionen Y(t): Mit den beiden freien Parametern h und hm gilt (vgl. Tab. 4.5) $Y(t) = F(t) + h + hm \cdot t$

Funktion F(t) Nr.	Aufgebaut aus $G_k(t)$	Parameter-Satz[1] t_o	$A_2^{(1)}$	$\nu_Q^{(1)}$	δ	η	$A_2^{(2)}$	$\nu_Q^{(2)}$
1a	(1)	x	x	x	-	-	-	-
1b	(1) + (4-6)	x	x	x	x	-	-	-
2a	(2)	x	x	x	-	x	-	-
2b	(2) + (4-6)	x	x	x	x	x	-	-
3a	(1) + (2)	x	x	x	-	x	x	x

[1] x(-): Der Parameter tritt (nicht) auf.

Die möglichen Formen der Funktion F(t) ergeben sich aus den analytischen Ausdrücken für $G_2(t)$ in Tab.4.5. Die beim Anpassen der einzelnen Spektren benutzten theoretischen Funktionen Y(t) sind in Tab.4.6 aufgeführt. Neben den bereits diskutierten Parametern A_2 (Anisotropiekoeffizient), ν_Q (Quadrupolkopplungskonstante), δ (Dämpfungskonstante) und η (Asymmetrieparameter) treten zusätzlich als mögliche freie Parameter auf

t_o, der Zeitnullpunkt der Messung, der durch die prompte γ-Strahlung bestimmt und gewöhnlich bekannt ist, sowie

h, hm, Parameter, die einen zeitabhängigen Untergrund für das Spektrum R(t) berücksichtigen.
Damit lautet die anzupassende Funktion

$$Y(t) = F(t) + h + hm \cdot t \qquad (4.18)$$

und es wird abgefragt, ob die Ungleichung

$$\sum_i \frac{(Y_i - R_i)^2}{\Delta R_i^2} \leq \chi_r^2 + \Delta\chi_r^2 \qquad (4.19)$$

erfüllt ist (vgl. Anhang A2).

In Tab.4.7 sind die äußeren Bedingungen sowie die Ergebnisse für die einzelnen Experimente zusammengefaßt. Die Messungen lassen sich in drei Gruppen gliedern: Die Implantation der Sonde ^{67}Ge in die Matrizen Cd, In, Sn und Sb, der Sonde ^{67}Zn in Cd und die Implantation von ^{67}Ge in Ga zum Vergleich mit Messungen von ^{69}Ge in Ga.

4.3.1 Implantation von ^{67}Ge in Cd, In, Sn und Sb

Die in Abb.4.12 - 4.15 gezeigten Messungen lassen erkennen, daß die einzelnen Anisotropien zwischen maximal A_2 = 0,24 (Sb, T = 195^{0}C) und minimal A_2 = 0,08 (Cd, T = -20^{0}C) liegen, abhängig von den Dicken der einzelnen Targetschichten und den Targettemperaturen. Beide Parameter sind in Tab.4.7 aufgeführt. Die gemessenen Anisotropien müssen verglichen werden mit der einer ^{67}Ge-Sonde in einer Umgebung ohne dynamische zeitabhängige Wechselwirkung bei 100 % Implantation: Sowohl die Messung der magnetischen Wechselwirkung in einer flüssigen Zn-Legierung (SIE 74) als auch die Messung der Quadrupolwechselwirkung in Zn bei 360^{0}C (HLM 73), also nahe unter dem Schmelzpunkt (T = 420^{0}C), ergeben A_2 = 0,28. Da in beiden Messungen der Kern innerhalb seiner Reaktionsmatrix untersucht worden ist (Selbstimplantation), kann dieser Wert praktisch mit der vollen Anisotropie der Sonde gleichgesetzt werden. Die Güte der einzel-

Tab. 4.7: Meßergebnisse

Experiment	Target Nr.	T[°C]		$A_2^{(i)}$	$\nu_Q^{(i)}$	δ_G[%]	η	F(t) Nr.	χ_r^2
^{67}Ge(Cd)	1	170		20,8(8)	53,5(5)	-	-	1a	1,37(11)
			i=1	19,3(9)	53,0(5)	-	-		
			i=2	4,3(11)	78, (2)	-	-	3a	1,29(11)
	1	20		12,5(8)	60,3(6)	-	-	1a	2,06(11)
			i=1	10,5(12)	58,7(8)	-	-		
			i=2	5,3(11)	85,5(20)	-	-	3a	1,84(11)
				13,9(9)	59,5(9)	11,(3)	-	1b	1,91(11)
^{67}Ge(Cd)	2	110		12,7(13)	56,3(6)	-	-	1a	1,11(11)
			i=1	13,1(13)	55,8(5)	-	-		
			i=2	2,9(11)	80,5(20)	-	-	3a	1,08(11)
				14,4(17)	56,2(7)	5,(2)	-	1b	1,10(11)
	2	-20		8,7(15)	60,4(9)	-	-	1a	1,41(12)
			i=1	8,3(15)	59,7(10)	-	-		
			i=2	4,8(13)	80,6(15)	-	-	3a	1,30(12)
^{67}Ge(Ga)	3	-25		13,3(53)	100, (15)	-	0,70(5)	2a	1,11(16)
^{67}Ge(In)	4	55		16,9(9)	22,6(6)	-	-	1a	0,76(12)
			i=1	16,3(9)	22,6(5)	-	-		
			i=2	3,7(11)	82, (2)	-	-	3a	0,71(12)
^{67}Ge(In)	5	80		15,2(7)	18,7(5)	-	-	1a	0,96(12)
	5	43		13,2(12)	24,3(10)	-	-	1a	1,48(13)
			i=1	13,3(12)	25,3(10)	-	-		
			i=2	6,3(15)	85, (2)	-	-	3a	1,31(13)
	5	0		11,6(8)	25,8(9)	-	-	1a	1,42(13)
^{67}Ge(Sn)	6	175		17,6(12)	39,7(4)	-	-	1a	0,90(14)
^{67}Ge(Sb)	7	195		24,1(13)	20,3(2)	-	-	1a	1,07(14)
^{67}Zn(Cd)	8	100		5,1(8)	39,0(4)	-	-	1a	1,13(9)
				5,2(11)	39,0(4)	1,(2)	-	1b	1,13(9)

nen Spektren, denen jeweils eine Meßzeit von etwa 4 - 6 Stunden entspricht, wird trotz des energetisch günstigen γ-Überganges von 734 keV doch noch von dem γ-Untergrund der Gastmatrizen beeinflußt, wie ein Vergleich der Fehlerbalken der Messungen in Indium und Antimon zeigt.

In allen Fällen kann die Wechselwirkungsfrequenz ν_Q eindeutig bestimmt werden, jedoch tritt in einem Teil der Messungen zusätzlich eine 2. Frequenz auf, deren Wert nahezu konstant sowohl für die verschiedenen Targets als auch für die einzelnen Temperaturen bei 80 - 85 MHz liegt. In der drittletzten Spalte sind die Werte für eine mögliche Frequenzverteilung δ angegeben unter Annahme einer Gauß-Verteilung, die ein kleineres χ_r^2

gegenüber einer Lorentz-Verteilung ergibt. Soweit überhaupt erkennbar, zeigt das reduzierte "chi-square" in der letzten Spalte keine signifikante Verbesserung der Anpassung. Entsprechend den Kristallstrukturen - hexagonal und tetragonal (vgl. Tab.4.3) - der verwendeten Matrizen, die alle eine Gitterachse mit Axialsymmetrie besitzen, können die Spektren unter Annahme eines axialsymmetrischen EFG ($\eta = 0$) angepaßt werden.

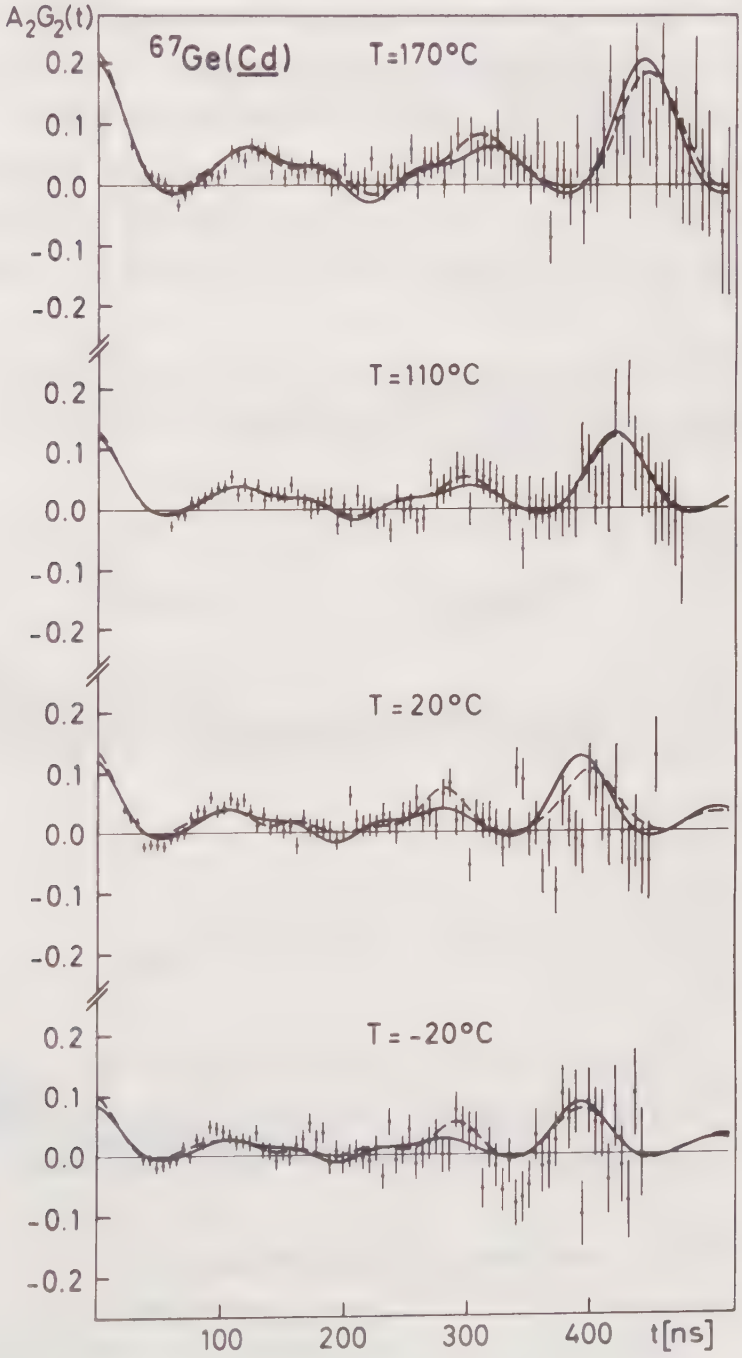
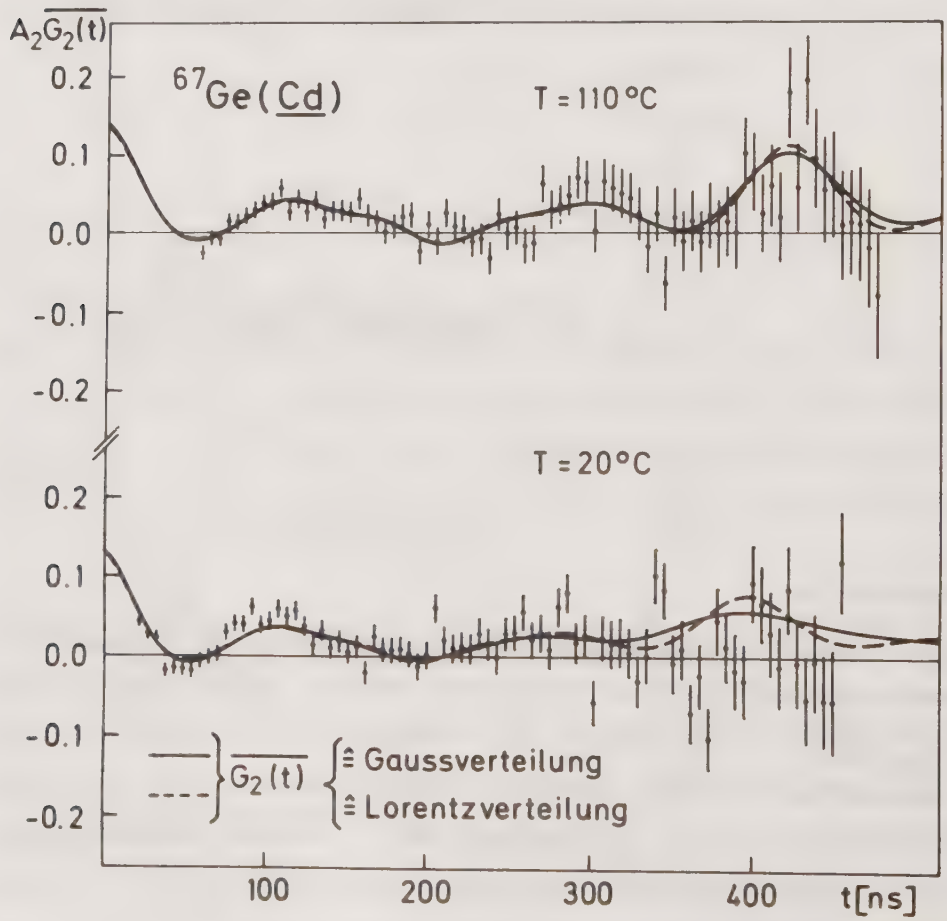


Abb. 4.12:
Quadrupolwechselwirkung von ^{67}Ge in Kadmium bei verschiedenen Temperaturen. Während die ausgezogene Kurve eine Anpassung mit nur einer statischen Wechselwirkung darstellt, sind für die gestrichelte Kurve zwei Wechselwirkungen angenommen worden.

Die Zusammenfassung der angepaßten Parameter in Tab.4.7 zeigt außerdem, daß für jede Gastmatrix mindestens bei einer Temperatur eine theoretische Funktion F(t) gefunden worden ist, die mit den Meßwerten auf der Basis des χ^2-Tests verträglich ist. Im einzelnen gilt für die verschiedenen Matrizen:

Kadmium: Die Messungen sind wie auch beim Indium mit zwei verschiedenen Targets durchgeführt worden, die sich in der Dicke sowohl bezüglich der Reaktionsmatrix als auch der Gastmatrix unterscheiden (Abb.4.12). Die Werte für A_2 (Funktion (1a)) bei $T = 20^0C$ und 110^0C zeigen deutlich eine Abhängigkeit der Amplitude von den verwendeten Schichtdicken der Targets Nr.1 und 2, da trotz der stark unterschiedlichen Temperaturen die Amplitude nahezu konstant ist. Bei allen Temperaturen und bei b e i d e n Targets ist zusätzlich eine 2. Frequenz sichtbar (gestrichelte Kurve). Allerdings ergibt die Anpassung nach

Abb. 4.13:
Quadrupolwechselwirkung von ^{67}Ge in Kadmium: Die angepaßte Kurve berücksichtigt jeweils eine Verteilung für die Größe der auf die Sonden wirkenden EFG.



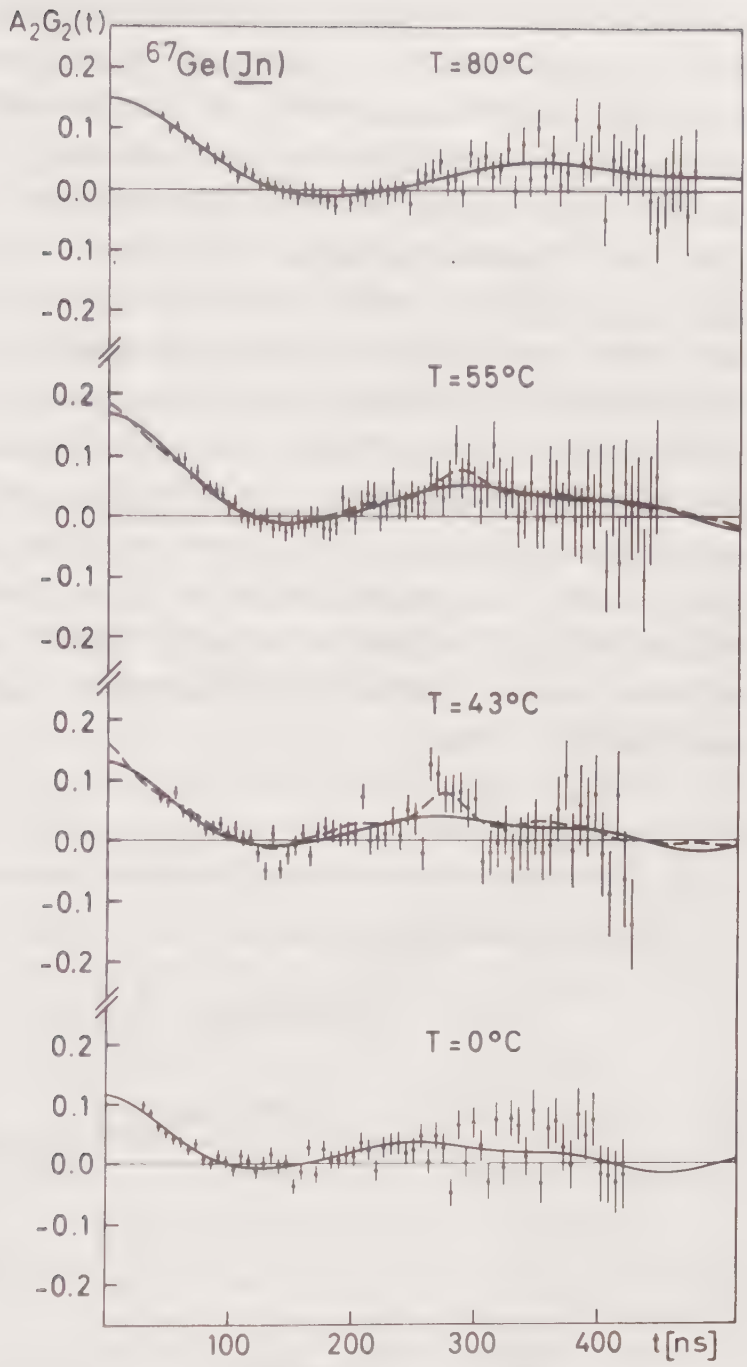


Abb. 4.14:
Quadrupolwechselwirkung von ^{67}Ge in Indium. Für die theoretischen Anpassungen bei den einzelnen Temperaturen vgl. Abb. 4.12.

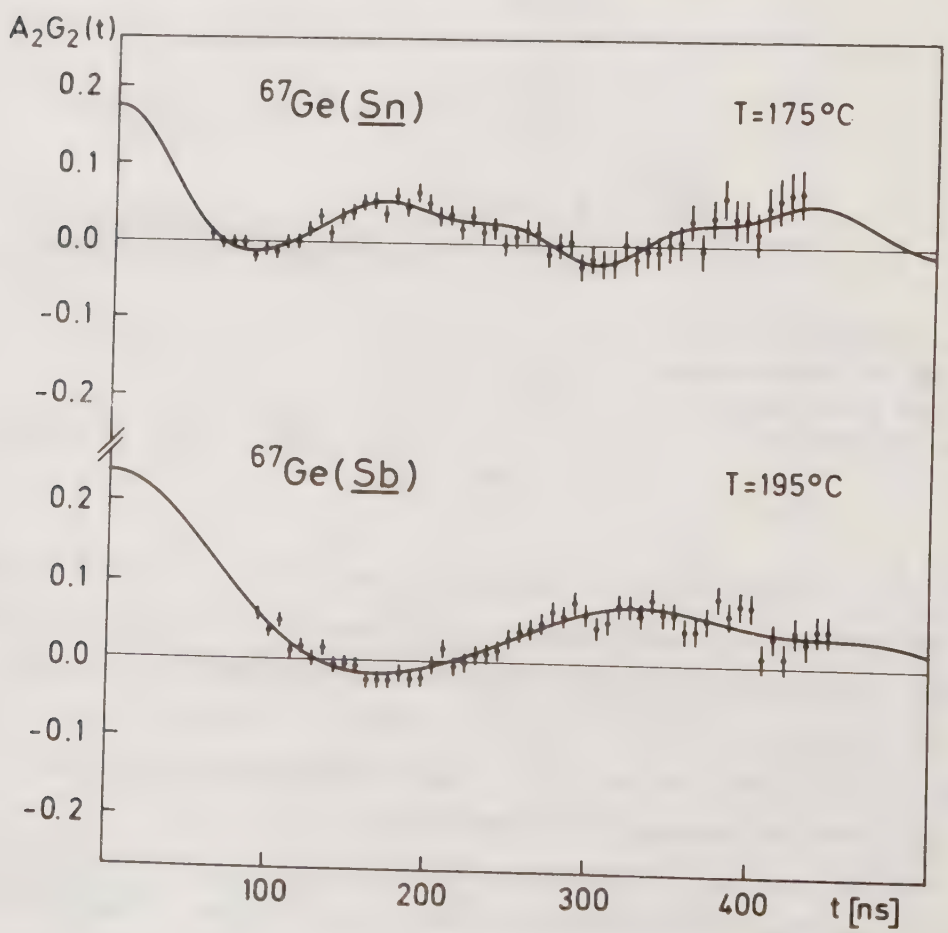
Funktion (3a) innerhalb der Fehlergrenzen von χ^2_r keine signifikante Verbesserung. Mit sinkender Temperatur scheint sich daneben eine zunehmende Frequenzverschmierung anzudeuten (Abb. 4.13), wie sie auch für ^{111}Cd(Cd) (BBH 72) sichtbar ist. Die Werte für χ^2_r bleiben jedoch für die einzelnen Anpassungen innerhalb der Fehlergrenzen konstant.

Indium: Die Situation entspricht hier nahezu der des Kadmium; auch hier sind für beide Targets Anzeichen einer zusätzlichen Frequenz vorhanden (gestrichelte Kurve in Abb.4.14), die jedoch

zu höheren und tieferen Temperaturen hin verschwindet. Die großen Fehlerbalken der Messungen, verursacht durch den hohen, innerhalb der Messung zeitlich konstanten, Untergrund, erlauben im wesentlichen nur eine Anpassung mit der physikalisch einfachsten theoretischen Funktion (1a), also mit dem kleinsten Satz freier Parameter.

Zinn und Antimon: Beide Spektren sind nur bei einer, jedoch möglichst hohen Temperatur aufgenommen worden, um die volle Anisotropie zu erhalten, was besonders im Falle des Antimon wichtig ist, da auch hier der Feldgradient wie im Indium wieder sehr klein ist (Abb.4.15). Die obere Grenze der Targettemperatur wird durch die ZnS-Schichten gegeben, die bei etwa 250^0 - 300^0C beginnen, unter Teilchenbeschuß abzudampfen. Die Wechselwirkung in beiden Gittern kann wieder unter Annahme eines axialsymmetrischen Feldgradienten gemäß Funktion (1a) interpretiert werden.

Abb. 4.15:
Quadrupolwechselwirkung von ^{67}Ge in Zinn und in Antimon.

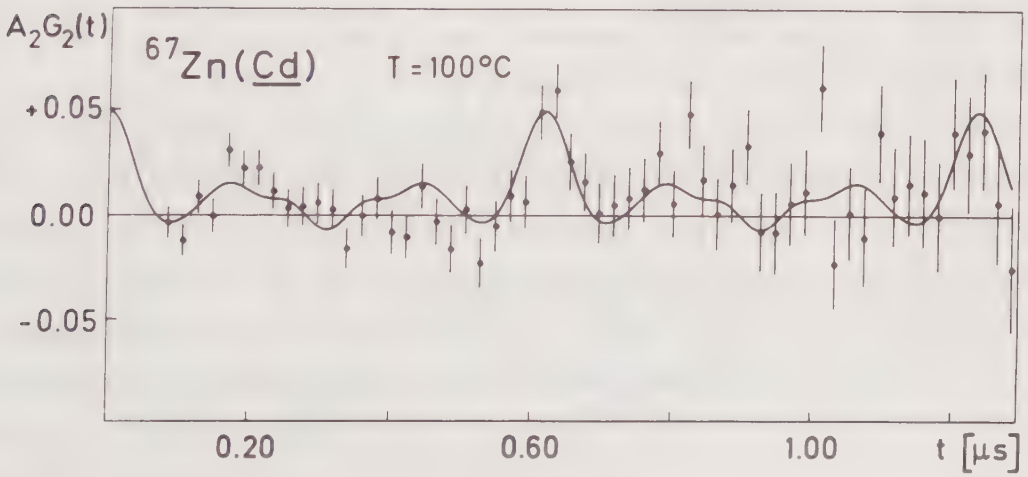


4.3.2 Implantation von ^{67}Zn in Cd

Die Quadrupolwechselwirkung der ^{67}Zn-Sonde in Kadmium läßt sich, wie Abb.4.16 zeigt, analysieren mit Hilfe der Funktion (1a) für eine statistisch orientierte, polykristalline Probe mit axialsymmetrischem Feldgradienten. Anpassungen mittels der anderen aufgeführten Funktionen ergeben keine Verbesserung für die Ausgleichskurve. Das Überführen des metallischen Nickel in eine organische Verbindung scheint somit zusätzliche Wechselwirkungen verhindert zu haben, so daß der Wechselwirkung, die über nahezu zwei Perioden sichtbar ist, eine eindeutige Frequenz ν_Q zugeschrieben werden kann.

Auffällig ist die stark reduzierte Anisotropie der ^{67}Zn-Sonde. Vergleiche mit Messungen in einem Nickel-Target (BLM 73) zeigen eine Reduktion von $A_2 = 0,22$ auf $A_2 = 0,05$. Als mögliche Ursache bietet sich hier in erster Linie ein Fehler in der geeigneten Dimensionierung der einzelnen Targetschichtenan, da die Unsicherheiten bezüglich des Bremsvermögens für Medien mit der Kernladungszahl $Z < 10$ leicht zu falschen Reichweiten für die Rückstoßkerne führen, so daß entweder die Reaktionsmatrix zu dick oder die Gastmatrix zu dünn gewesen sein kann.

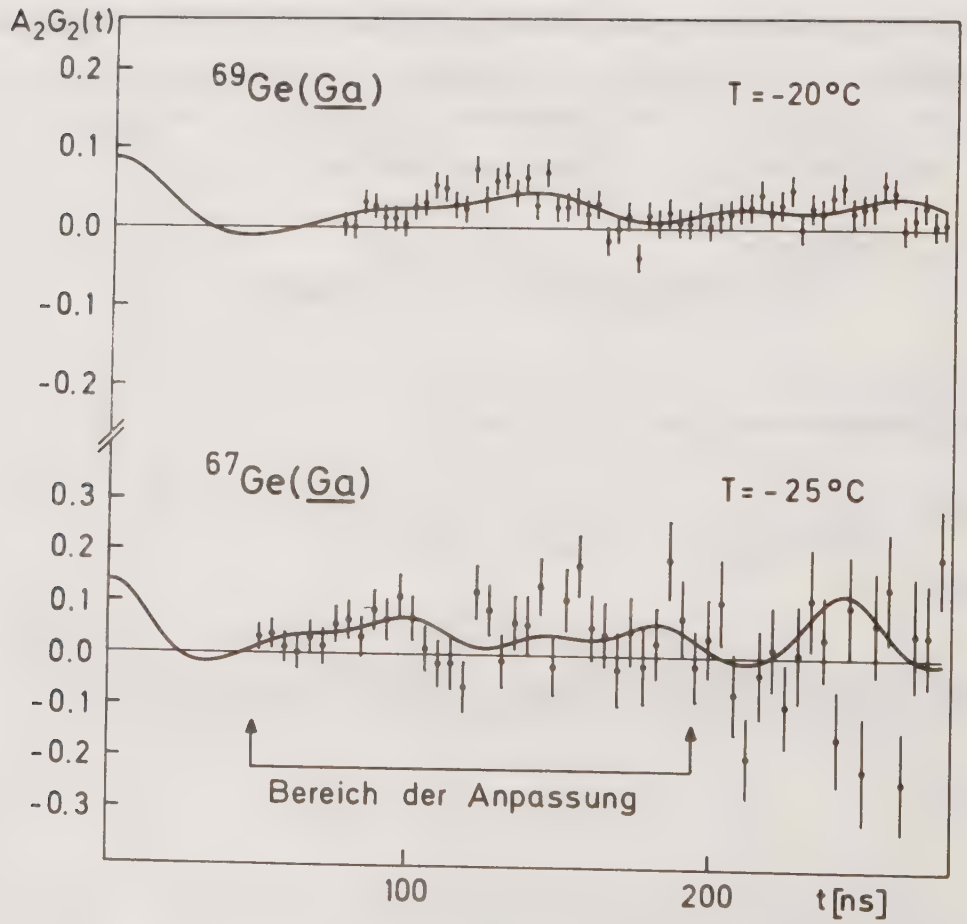
Abb. 4.16:
Quadrupolwechselwirkung von ^{67}Zn in Kadmium.



4.3.3 Implantation von ^{67}Ge in Ga (Vergleich Dicktarget und "Dünne Schicht")

Die Messung in Abb.4.17 soll in erster Linie zeigen, daß identische Ergebnisse bei der Messung in einem Dicktarget (Selbstimplantation) und einem Schichttarget erzielt werden. - Zum optischen Vergleich ist ein entsprechender Ausschnitt der Messung ^{69}Ge in Ga in Abb.4.17 gezeigt. - Da aus Gründen, die außerhalb der Messung liegen, für die Aufnahme dieses Spektrums nur eine begrenzte Zeit zur Verfügung gestanden hat, sind die Ergebnisse mit entsprechenden Fehlern behaftet. Es läßt sich eine optimale Anpassung an die Meßwerte erzielen, wenn ein nicht-axialer Feldgradient angenommen wird. Da das Verhältnis der Quadrupolmomente 1,22 : 1 von ^{67}Ge zu ^{69}Ge in Zink bekannt ist

Abb. 4.17:
Quadrupolwechselwirkung der Sonden ^{67}Ge und ^{69}Ge in Gallium. Beide Messungen lassen sich interpretieren unter Annahme eines nicht-axialsymmetrischen EFG mit $\eta = 0{,}7$. Die Wechselwirkung der ^{69}Ge-Sonde ist als Ausschnitt (HLM 73) entnommen.



(HLM 73), können die entsprechenden Quadrupolkopplungskonstanten ν_Q in Gallium verglichen werden:

Die Analyse der Daten ergibt bei einer Targettemperatur von $T = -25^0C$ für ^{67}Ge eine Quadrupolkopplungskonstante und einen Asymmetrieparameter (vgl. Tab.4.7)

$^{67}Ge(Ga)$: ν_Q = 100(15) MHz, η = 0,70(5)

Diese Werte sind zu vergleichen mit der Messung von ^{69}Ge in Gallium bei $T = -20^0C$ (HLM 73)

$^{69}Ge(Ga)$: ν_Q = 70,8 MHz, η = 0,697

Vernachlässigt man die unterschiedlichen Temperaturen, ergibt sich für das Verhältnis der Quadrupolmomente $Q(^{67}Ge) : Q(^{69}Ge) = 1,4(2) : 1$. Dieses Verhältnis ist um etwa 10 % größer als das im Zink; es stimmt aber die Richtung der Abweichung, die durch den Unterschied in den Temperaturen bedingt sein kann, und es ist verträglich innerhalb der Fehlergrenzen. Daneben zeigt der Wert für den Asymmetrieparameter jedoch, daß für beide Messungen Ort und Umgebung der Sonde identisch zu sein scheinen: Gallium mit seiner orthorhombischen Gitterstruktur besitzt keine Gitterachse mit axialer Symmetrie, so daß für den EFG ein Asymmetrieparameter ungleich Null erwartet werden muß. Tatsächlich zeigen alle bisherigen Experimente im Gallium diese Asymmetrie; so weisen die Wechselwirkungen mit einer Ga-Sonde ein η von 0,171 auf (VAW 69), während in neuesten Messungen von ^{73}As in Ga (IRS 75) ein η von 0,739 bestimmt worden ist. Dieser Unterschied im Asymmetrieparameter weist auf eine starke Sondenabhängigkeit der Gitterstruktur hin.

Gewichtet mit der Genauigkeit der Messung, die jedoch ohne technische Schwierigkeiten zu verbessern ist, ergibt dieses Experiment, daß Schichten von 1000 - 2000 Å Dicke im Bereich der Hyperfeinwechselwirkungen das gleiche physikalische Verhalten wie "unendlich" dicke Substanzen zeigen. Dies ist ein Ergebnis, das bereits Aeppli und Mitarbeiter erhalten haben: Zeitintegrale Messungen der Anisotropie von ^{111}Cd-Kernen in Silberschichten unterschiedlicher Dicke haben eine ungestörte Winkelverteilung wie für dicke Medien gezeigt, wenn die Schichtdicke größer als 1000 Å gewesen ist (ABF 51).

5. Analyse und Diskussion der gemessenen Wechselwirkungen

Bei allen "in beam"-Experimenten stellt sich die Frage, an welchem Platz und in welcher Umgebung die Sonde sich befunden hat, mittels derer eine Wechselwirkung gemessen worden ist. Solange hierzu nicht gleichzeitig ergänzende Experimente (z.B. Channeling-Experimente, Elektronenmikroskopie) durchgeführt werden, kann diese Frage letzten Endes nur auf Grund von Vermutungen gelöst werden, die sich jedoch in vielen Fällen durch Vergleich mit anderen Experimenten bis in den Bereich der hohen Wahrscheinlichkeit verdichten lassen. Bei der Verwendung von Mehrschichten-Targets wird diese Problematik noch vergrößert, da die Sonde in mindestens zwei, physikalisch verschiedenen, Schichten abgebremst werden kann, und diese Schichten durch die Art ihrer Herstellung gleichzeitig eine veränderte Gitterstruktur haben können, verglichen mit den entsprechenden massiven Substanzen (Abschnitt 5.1.1).
Erst nach Kenntnis des Gitterplatzes der Sonde ist es möglich, einen Vergleich mit anderen Messungen vorzunehmen. Die hierfür benötigte Fehlerangabe wird neben dem statistischen Fehler, der durch die Varianz der χ^2-Anpassung ausgedrückt ist, in einem weit weniger bekannten Maß durch systematische Fehler beeinflußt. Dieser Einfluß kann dann besonders groß sein, wenn nur der Bruchteil einer vollen Wechselwirkungsperiode gemessen worden ist, wie bei den Messungen in Indium und Antimon. Es ist also festzustellen, wie gut die Beschreibung der gemessenen Wechselwirkung durch die Anpassung der jeweiligen Abschwächungsfunktion $G_k(t)$ ist, bzw. wie stark sich die Quadrupolkopplungsfrequenz ν_Q ändert unter der Annahme verschiedener Funktionen $G_k(t)$ (Abschnitt 5.1.2).
Bei dieser Diskussion kann die Kenntnis der Anisotropie hilfreich sein, wenn es gelingt, den Einfluß zusätzlicher Parameter zu separieren, wie die jeweiligen Schichtdicken und die Targettemperatur; beide können die Anisotropie stark beeinflussen. Außerdem werden die Rechnungen aus Abschnitt 4.1 erörtert unter Berücksichtigung der verwendeten Schichtdicken und gemessenen Anisotropien (Abschnitt 5.1.3).

Nachdem in Abschnitt 5.1 die Analyse der Messung abgeschlossen ist, wird in Abschnitt 5.2 eine Interpretation der extrahierten Wechselwirkungsstärken versucht. Durch die große Zahl der inzwischen bekannten Kopplungskonstanten ist es in Verbindung mit diesen Messungen möglich, die relative Änderung effektiver EFG direkt durch den Vergleich der Frequenzen ν_Q für verschiedene Matrizen zu untersuchen (Abschnitt 5.2.1). Daneben wird der Versuch unternommen, durch zusätzliche Annahmen über die Größe von Kernquadrupolmomenten die relative Änderung der so gewonnenen EFG für eine Sonde in verschiedenen Matrizen (Abschnitt 5.2.2) und verschiedener Sonden in jeweils einer Matrix (Abschnitt 5.2.3) zu beobachten. Die Schlüsse, die aus den letzten Untersuchungen gezogen werden, sind allerdings im Gegensatz zum ersten Vergleich stark von der Unsicherheit der verwendeten Quadrupolmomente geprägt.

5.1 Analyse der Messung

5.1.1 Ort und Umgebung der Sonde

a) Ort der Sonde

Aus den aufbereiteten experimentellen Daten in Abb.4.12 - 4.17 ist ersichtlich, daß die gemessenen Wechselwirkungsfrequenzen ν_Q von den EFG der jeweiligen Gastmatrix herrühren. DPAD-Messungen an ^{111}Cd in metallischem Kadmium und an ^{69}Ge in metallischem Zink weisen neben anderen darauf hin, daß Sonden, die durch Kernreaktionen erzeugt werden, wenigstens zu einem Teil auf regulären Gitterplätzen landen: McDonald und Mitarbeiter (DLF 72) haben zeitdifferentiell ^{111}Cd-Kerne untersucht, die durch Coulombanregung aus einer aufgedampften Kadmium-Schicht in eine dahinter liegende polykristalline Kadmium-Scheibe implantiert worden sind. Sie zeigen, daß ihre Resultate mit denen von R.S. Raghavan und Mitarbeitern (RAR 71) übereinstimmen, die in DPAC-Messungen an einer radioaktiven ^{111}Cd-Probe erhalten worden sind. Beide Messungen ergeben bei drei verschiedenen Temperaturen gleiche Wechselwirkungsfrequenzen sowie einen axial-

symmetrischen EFG. Dieses Ergebnis ist durch DPAD-Messungen von Bleck und Mitarbeitern (BBH 72) bestätigt worden durch Untersuchung der Temperaturabhängigkeit für ^{111}Cd in Kadmium nach der Kernreaktion ^{110}Cd(d,p). - In einem anderen Experiment ist die elektrische Quadrupolwechselwirkung von ^{69}Ge in polykristallinem Zink von Haas und Mitarbeitern (HLM 73) nach der Kernreaktion ^{66}Zn(α,n) gemessen worden; aus ihr ist über einige Mikrosekunden hin eine einzige scharfe Wechselwirkungsfrequenz ohne zeitliche Dämpfung der Amplitude ersichtlich. Daraus kann geschlossen werden, daß es möglich ist, direkt nach Kernreaktionen Quadrupolwechselwirkungen an regulären Gitterplätzen zu messen.

Während bei diesen Messungen jedoch die Massen der Sondenatome nahezu identisch mit denen des Gastgitters sind, ist in den vorliegenden Experimenten die Masse der ^{67}Ge-Sonde fast um einen Faktor 2 kleiner. Messungen der magnetischen Wechselwirkung von ^{19}F in Nickel (BMS 67, KLS 68) zeigen, daß bei großen Massendifferenzen die Wahrscheinlichkeit für die Besetzung von zusätzlichen Zwischengitterplätzen durch die Sonden wächst, so daß Wechselwirkungen verschiedener Stärke sichtbar werden. Dagegen weisen die Messungen von ^{67}Ge und ^{67}Zn nicht auf einen zusätzlichen Zwischengitterplatz hin (vgl. Abschnitt 4.3); eine schwach vorhandene zweite Frequenz ändert ihren Wert nicht beim Wechsel der Targets und ist im Sinne der χ^2-Analyse unsignifikant. - Damit kann für den Platz der beiden Sonden in den einzelnen Gastgittern mit hoher Wahrscheinlichkeit ein regulärer Gitterplatz angenommen werden.
Daß dieser Schluß nicht in allen Fällen zwingend ist, zeigen Quadrupolwechselwirkungen von ^{111}Cd in Beryllium, die nach Implantation der radioaktiven Sonden ^{111}Ag, ^{111}Cd und ^{111}In mittels eines Ionenseparators gemessen worden sind (P.Raghavan und Mitarbeiter in KAW 74). Dabei sind ^{111}Cd-Kerne, die aus dem Zerfall der ^{111}Ag-Kerne stammen, einem um rund 2/3 kleineren EFG ausgesetzt als Kerne nach dem Zerfall von ^{111}Cd und ^{111}In. Jedoch beträgt hier das Massenverhältnis Sonde zu Gitteratom bereits mehr als 10:1, und die ionischen Radien, maßgebend für den Einbau in metallische Gitter, sind gerade für die Atome Beryllium und Silber besonders unterschiedlich (Be^{2+}: 0,31 Å,

Ag^{1+}: 1,32 Å). Dagegen weisen die in diesem Experiment vorkommenden Atome nicht so unterschiedliche Daten auf, daß ein ähnlicher Effekt wahrscheinlich wäre.

b) Sondenumgebung - Kristallstruktur

Neben dem Ort der Sonde ist ihre Umgebung von ebenso großer Bedeutung zur richtigen Interpretation der Feldgradienten. Die Spektren für ^{67}Ge in Kadmium (T = 170°C und 110°C) und Zinn sowie ^{67}Zn in Kadmium zeigen, daß die gemessenen Daten gut wiedergegeben werden durch die Abschwächungsfunktion $G_k(t)$ für eine polykristalline, statistisch orientierte Probe mit einem axialsymmetrischen Feldgradienten ohne eine merkliche Amplitudendämpfung. Ebenfalls sind keine Texturen sichtbar, die sich in einer Änderung der verwendeten s_{k2}-Koeffizienten äußern würden. Im Indium und Antimon ist der EFG so klein, daß jeweils etwa nur ein Drittel der vollen Modulation gesehen wird, deren Analyse allein einen solchen Schluß nicht erlaubt, wie es im folgenden Abschnitt erläutert wird (vgl. Anhang A3).

Zusammen mit den angefertigten Röntgenstrahl-Beugungsanalysen, die von allen Proben aufgenommen worden sind und qualitativ die vorgeschriebene polykristalline Struktur für alle vier in Frage kommenden Matrizen aufweisen, sollte diese Aussage jedoch auch auf die Messungen in Indium und Antimon übertragbar sein.

c) Sondenumgebung - Gitterstörungen

Neben der normalen Gitterstruktur der einzelnen Matrizen beeinflußt auch deren Störung den auf die Sonde wirkenden EFG, was sich in einer veränderten Form der Abschwächungsfunktion $G_k(t)$ äußern kann. Diese Störungen werden sowohl durch Teilchen des Beschleunigerstrahles als auch durch den Rückstoß der betrachteten Sonde verursacht:

- Die Ionen aus dem Beschleunigerstrahl, deren kinetische Energie beim Durchqueren der einzelnen Schichten etwa 10 MeV beträgt, treten vorwiegend mit den Hüllenelektronen des Gitters in Wechselwirkung, wie es in Kapitel 4 gezeigt worden ist. In Metallen sollte jedoch eine Rekombination der Elektronenkonfiguration des Gitters innerhalb von Zeiten ($\sim 10^{-12}$ sec) erfolgen, die klein sind gegen die eigene Zeitauflösung.

- Die Sonden, die durch die Kernreaktion nahezu den vollen Impuls der α-Teilchen übertragen bekommen, werden zum großen Teil durch elastische Stöße mit den Gitteratomen abgebremst, so daß am Ende der eigenen Bahn Fehlstellen (Leerstellen, Zwischengitteratome) produziert werden (vgl. dazu Abschnitt 5.1.3), vorher aber Stöße mit Atomen der Reaktionsmatrix deren zusätzliche Implantation in das Gastgitter bewirken. Diese Fremdatome in genügend hoher Konzentration können das Gastgitter verändern. Röntgenstrahl-Analysen eines Targets, vor und nach der Bestrahlung angefertigt, zeigen jedoch keine erkennbaren Effekte in dieser Richtung.

Soweit diese aber vorhanden sind, spielen sie sich in unmittelbarer Nachbarschaft der Grenzschicht beider Matrizen ab: So vergleicht z.B. R.S. Nelson (NEL 69) die Implantationsprofile von Bor-Ionen in Silizium, die mittels eines Ionenseparators (40 kV) direkt implantiert worden sind, mit solchen, die aus einer aufgedampften Bor-Schicht durch elastische Stöße mit 100 keV Ne^+-Ionen herausgestoßen worden sind; schon nach wenigen 100 Å ist deren Intensität bis auf wenige Prozent abgesunken, während das Maximum der Gaußverteilung für die direkt implantierten Ionen deutlich davon getrennt bei 1500 Å liegt. Dieses Beispiel ist interessant in zweierlei Hinsicht: Es zeigt, daß es günstig ist, den Schwerpunkt des Implantationsprofiles mehrere 100 Å von der Grenzschicht entfernt zu haben, um frei zu sein von den beschriebenen Störungen mit zusätzlich implantierten Atomen der Oberfläche; zum anderen berichten Cohen und Mitarbeiter (CBD 74), daß schon minimale Sauerstoffkonzentrationen bei hinreichender Zufuhr von thermischer Energie (z.B. Ausheizen) in der Lage sind, implantierte Sonden zu oxydieren (innere Oxydation); es können also auch die indirekt implantierten Atome (z.B. Sauerstoff) trotz ihrer geringen Eindringtiefe bei hinreichender Konzentration störend auf die Sonden wirken. Beide Störquellen - Wechselwirkung mit der Grenzschicht und Sauerstoffverunreinigung - sind in diesem Experiment durch die Größe der Rückstoßenergie und die Art der Schichtenpräparation ohne Bedeutung. Daraus kann geschlossen werden, daß der Aufbau des Targets mit seinen alternierenden

dünnen Schichten keine zusätzlichen Störquellen produziert gegenüber einem Dicktarget.

5.1.2 Frequenzanalyse und Fehler

Wie schon erwähnt, berücksichtigen die Fehlerangaben in Tab. 4.7 für die angepaßten Parameter, speziell für die Quadrupolkopplungskonstante ν_Q, lediglich den statistischen Fehler auf Grund der Messung, nicht aber mögliche systematische Fehler. Entsprechend der χ^2-Analyse weisen daneben χ^2_r-Werte, die weit außerhalb der Fehlergrenzen des Sollwertes liegen, auf eine systematische Abweichung der angepaßten theoretischen Funktion von den statistischen Meßergebnissen hin; es ist dann die theoretische Funktion, die hier im wesentlichen der Funktion $G_k(t)$ entspricht, falsch gewählt worden. Da bei einer χ^2-Analyse der Sollwert jedoch unabhängig vom statistischen Fehler der einzelnen Meßpunkte ist und in der erlaubten Varianz $\Delta\chi^2$ nur die Anzahl der Meßpunkte berücksichtigt wird, ist es bei entsprechend großen Fehlern der einzelnen Meßpunkte nicht mehr möglich, zwischen mehreren unterschiedlichen theoretischen Funktionen zu unterscheiden. Das bedeutet, da es jetzt mehrere "passende" Funktionen gibt, daß Kenntnis vorhanden sein muß über alle möglichen vorkommenden theoretischen Funktionen, die zur Interpretation der Messung existieren; aus den Parametersätzen aller mit dem Sollwert verträglichen Funktionen wäre dann die Unsicherheit für die einzelnen Parameter abzuleiten. Dieser Weg wird jedoch nur selten möglich sein, so daß der Wert der χ^2-Analyse entsprechend dieser Fehlermöglichkeiten gewichtet werden muß!

- Die Ergebnisse in Tab.4.7 zeigen, daß sowohl für die Messungen von ^{67}Ge in Zinn als auch von ^{67}Zn in Kadmium der Wert für ν_Q mit Fehler direkt in Tab.5.1 übernommen werden kann, die eine Zusammenfassung aller Kopplungskonstanten mit den endgültigen Fehlerangaben enthält. In beiden Fällen ist das χ^2_r verträglich mit dem Sollwert, und es ist mindestens eine volle Periode der Wechselwirkung sichtbar, so daß die gewähl-

Tab.5.1: Quadrupolkopplungskonstanten eQV_{zz}/h von ^{67}Ge und ^{67}Zn in den untersuchten Matrizen mit Berücksichtigung der Fehleranalyse in Abschnitt 5.1.2

Sonde	Matrix	T[°C]	eQV_{zz}/h
^{67}Ge	Cd	170	53,3(5)
		110	56,2(6)
		20	59,5(9)
		-20	60,0(10)
^{67}Ge	In	80	18,7(9)
		55	22,6(11)
		43	24,8(12)
		0	25,8(13)
^{67}Ge	Sn	175	39,7(4)
^{67}Ge	Sb	195	20,3(10)
^{67}Zn	Cd	100	39,0(4)

te Anpassung eindeutig sein sollte.

- Ähnlich ist die Situation für ^{67}Ge in Kadmium; innerhalb der Fehlergrenzen stimmen die Werte der einzelnen Anpassungen überein, allerdings zeigt gerade bei tiefen Temperaturen das χ^2_r eine recht starke Abweichung vom Sollwert.
- Bei den Messungen der Sonde ^{67}Ge in Indium und Antimon ist jeweils nur etwa ein Drittel der vollen Periode sichtbar. Eine möglicherweise vorhandene Frequenzverschmierung oder eine Abweichung des Feldgradienten von der Axialsymmetrie kann damit nicht mehr eindeutig analysiert werden:

Die Abb.5.1a,b und 5.2 zeigen für den Spin I = 9/2 den Einfluß einer Frequenzverteilung nach einer Gauß- bzw. Lorentzfunktion auf $G_k(t)$ sowie die Funktion $G_k(\eta,t)$ für verschiedene Werte $\eta \neq 0$. Um den Einfluß der beiden Parameter δ und η auf eine Frequenzanalyse mittels der einfachsten Funktion (1a) (Tab.4.6) zu untersuchen, die diese Parameter nicht explizit berücksichtigt, werden künstliche Meßspektren mit den entsprechenden statistischen Schwankungen, wie sie im Falle des Indium und Antimon vorliegen, erzeugt in Abhängigkeit der Parameter δ und η. Für jeden einzelnen Parameter δ bzw. η wird

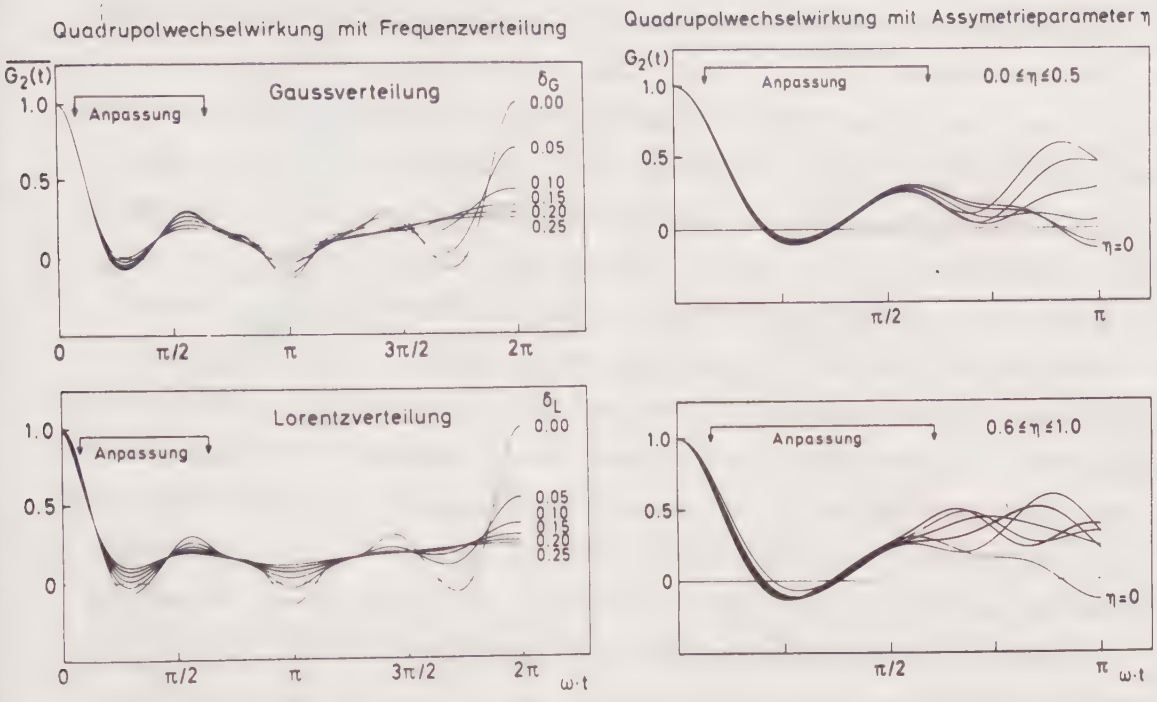


Abb. 5.1:
Einfluß der Verteilung von EFG auf die Form der Abschwächungsfunktion $G_2(t)$ für den Spin I = 9/2. Dabei beschreibt (a) δ_G die relative Breite einer Gaußverteilung und (b) δ_L die einer Lorentzverteilung.

Abb. 5.2:
Einfluß eines nicht-axialsymmetrischen EFG, beschrieben durch den Parameter η, auf die Form der Abschwächungsfunktion $G_2(t)$ für den Spin I = 9/2. Gezeigt wird jeweils die erste Hälfte der Modulation.

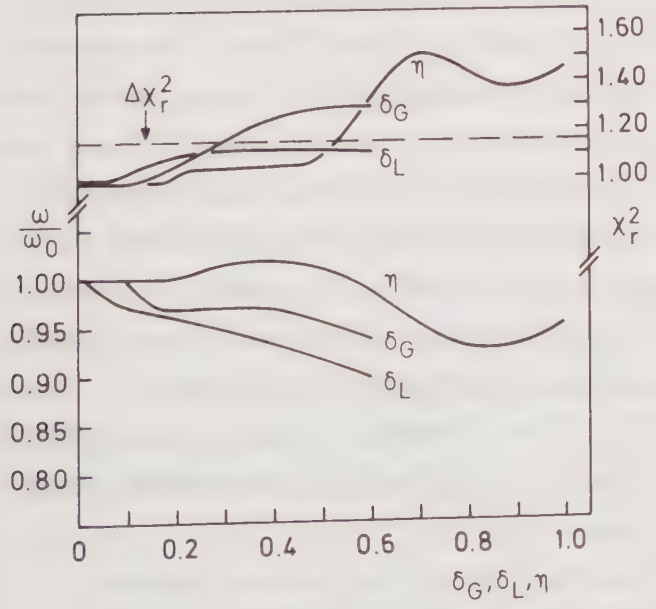


Abb. 5.3:
Abweichung der analysierten Frequenz ω von der "wahren" Frequenz ω_o: ω ergibt sich aus der Anpassung mit der analytisch einfachsten Funktion (1a) (vgl. Tab. 4.6) an die Wechselwirkung, die eigentlich mit den Parametern δ_G, δ_L und η gefittet werden müßte. Die Güte dieser Anpassung wird durch die Größen χ^2_r und $\Delta\chi^2_r$ beschrieben.

eine Anpassung der Funktion (1a) im selben Bereich des Spektrums vorgenommen, wie sie bei den Messungen erfolgt ist, also etwa 50 nsec nach dem Zeitnullpunkt über etwa ein Drittel der vollen Modulation. (Der Bereich ist in Abb.5.1 und 5.2 markiert.) In Abb.5.3 ist die relative Abweichung ω/ω_o von der "wahren" Frequenz ω_o zu sehen in Abhängigkeit von δ_G und δ_L, einer gauß- bzw. lorentzförmigen Frequenzverteilung, sowie von η. Außerdem ist der jeweilige Wert für χ^2_r aufgetragen. Während beide Frequenzverteilungen für eine Verkleinerung der scheinbaren Frequenzen ω gegenüber der "wahren" Frequenz sorgen, hat der Parameter η bei einer Anpassung in diesem Bereich bis $\eta = 0{,}6$ keinen merklichen Einfluß, für $\eta > 0{,}6$ ist dagegen eine Anpassung nicht mehr möglich, wie es am χ^2_r zu sehen ist. Mit dem χ^2_r der Analyse ist bei Annahme einer Gaußverteilung eine Verminderung der Frequenz um 3 % noch verträglich, während bei Annahme einer Lorentzverteilung auch eine Verminderung von 10 % nicht signifikant von $\chi^2_r = 1$ abweicht; allerdings macht sich eine dazugehörende Halbwertsbreite der Frequenzverteilung von 60 % auch schon im ersten Drittel des analysierten Spektrums stark bemerkbar nach Abb.5.1. - Auf Grund dieser Abhängigkeiten wird daher für die Messungen von ^{67}Ge in Indium und Antimon ein minimaler Fehler von 5 % für ν_Q angesetzt.

Keine Berücksichtigung in den bisherigen Analysen hat die Möglichkeit einer - wenigstens nahezu - einkristallinen Gitterstruktur gefunden; im Anhang A1 wird gezeigt, daß sich für diesen Fall nur die Amplituden der einzelnen auftretenden Frequenzen ändern, wobei die der kleinsten vorkommenden Frequenz immer ungleich Null bleibt. Dadurch ist die Periodenlänge für alle Orientierungen des Einkristalls erhalten, solange eine Wechselwirkung zu sehen ist. Es läßt sich herleiten (AAH 53), daß für die im Experiment verwendete Meßgeometrie unter $\Theta = 0^0$ und 90^0 der Kristall durch zwei Winkel θ und ϕ eindeutig orientiert ist (vgl. Abb.5.4a). Im Anhang A1 wird die explizite Form der Winkelverteilungsfunktion $W(\Theta,t)$ für $I = 9/2$ und $k_{max} = 2$ hergeleitet. In Abb.5.5 sind für verschiedene Winkel θ und ϕ die entsprechenden Wechselwirkungen gezeigt,

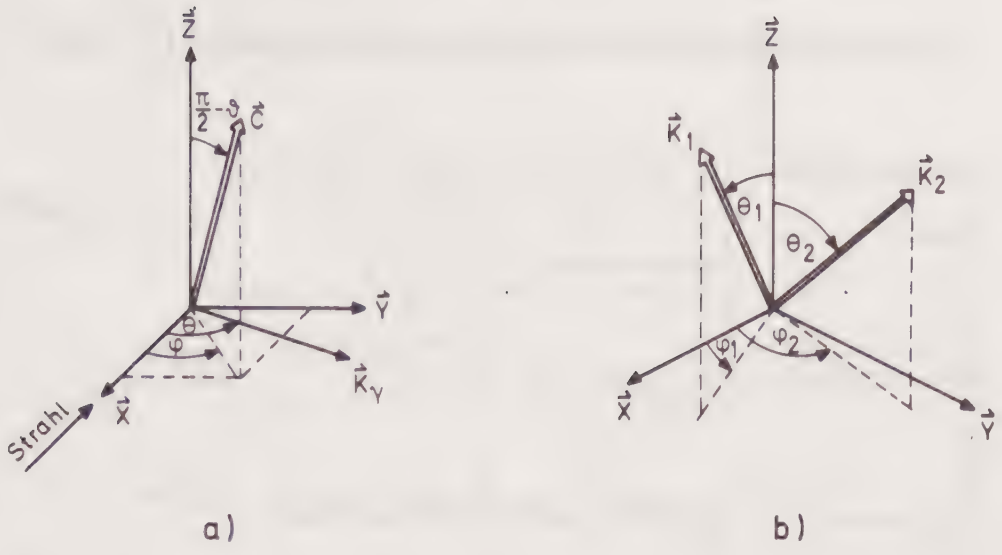


Abb. 5.4:
Koordinatensystem zur Beschreibung der Winkelverteilung W(t,θ) in einem Einkristall: (a) Die Richtung der Kristallachse $\vec{c}$ wird beschrieben durch die beiden Winkel ϑ und ϕ, wobei die γ-Strahlung unter der Richtung $\vec{K}_\gamma$ im Winkel θ zur Strahlrichtung registriert wird (vgl. Abb. 5.5 und Anhang A1).
(b) Koordinatensystem nach (FRS 65) mit $\vec{K}_1$ und $\vec{K}_2$ als Richtung für den Teilchenstrahl bzw. die gemessene γ-Strahlung (vgl. A1).

wie sie für die vorliegenden Messungen zu erwarten wären. Die Wahrscheinlichkeit hierfür ist jedoch sehr gering, da alle Röntgenanalysen polykristalline Strukturen bei Zimmertemperatur gezeigt haben. Zudem müßten alle Matrizen des Schichttargets die gleiche Kristallisationsrichtung besitzen, da eine Überlagerung der Wechselwirkung in etwa 10 statistisch orientierten Einkristallen bereits fast identisch mit der Wechselwirkung in einer polykristallinen Probe ist; Abb.5.6 zeigt solche Überlagerungen, wobei mit Hilfe eines statistischen Zufallsgenerators die Größen $d\phi$ und $d\sin\theta$ variiert und die einzelnen Spektren aufsummiert worden sind. Nicht berücksichtigt wird dabei, daß u.U. auch nur eine Streuung innerhalb eines Konus um einen festen Winkel (θ_o, ϕ_o) vorkommen kann. Die drei Beispiele deuten an, daß die Konvergenz gegen den polykristallinen Fall (gestrichelte Kurve) unabhängig von den Anfangsbedingungen ist.

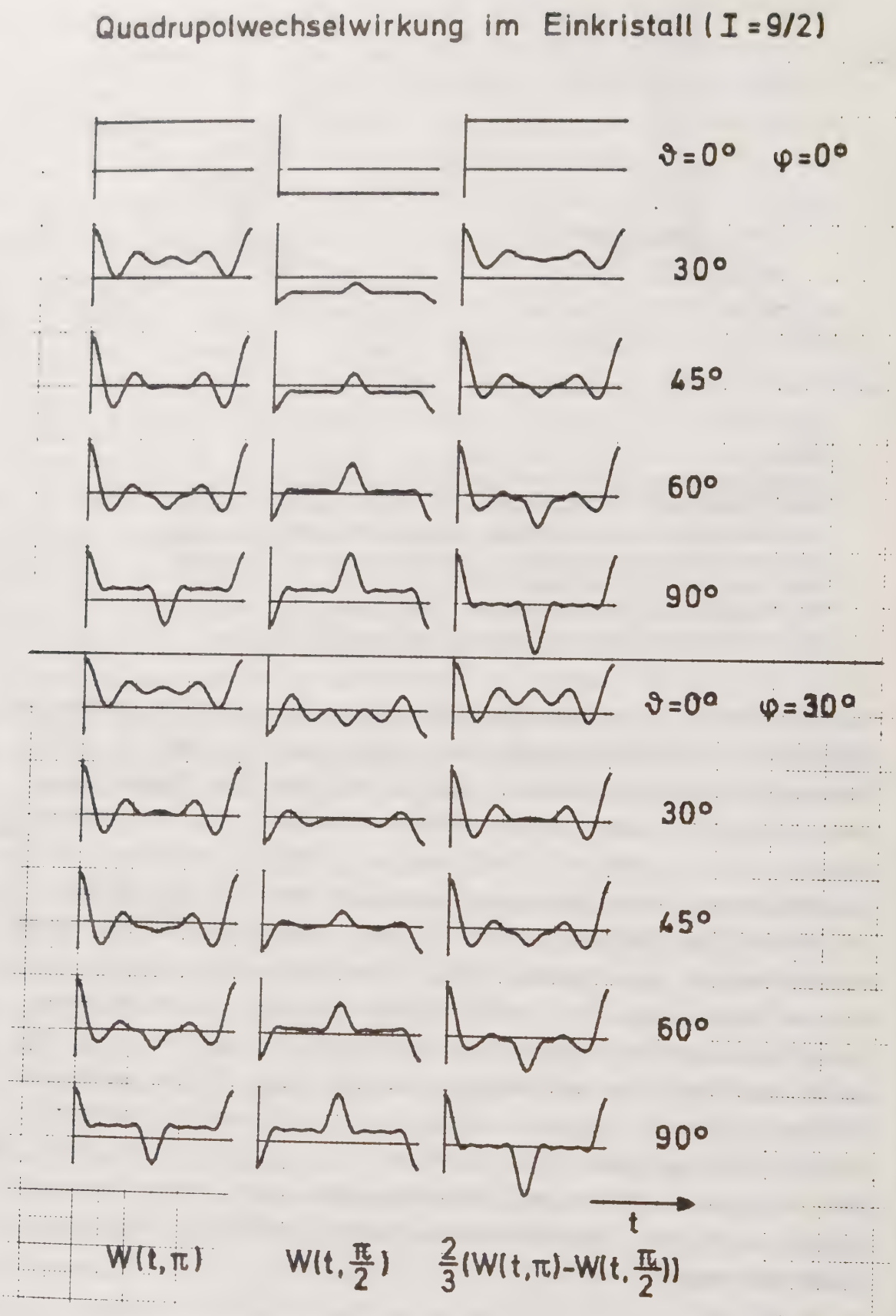


Abb. 5.5:
Winkelverteilung W(t,θ) im Einkristall für verschiedene Orientierungen (ϑ,φ) und Detektorwinkel θ (vgl. Abb. 5.4a).

Quadrupolwechselwirkung im Einkristall (I=9/2)

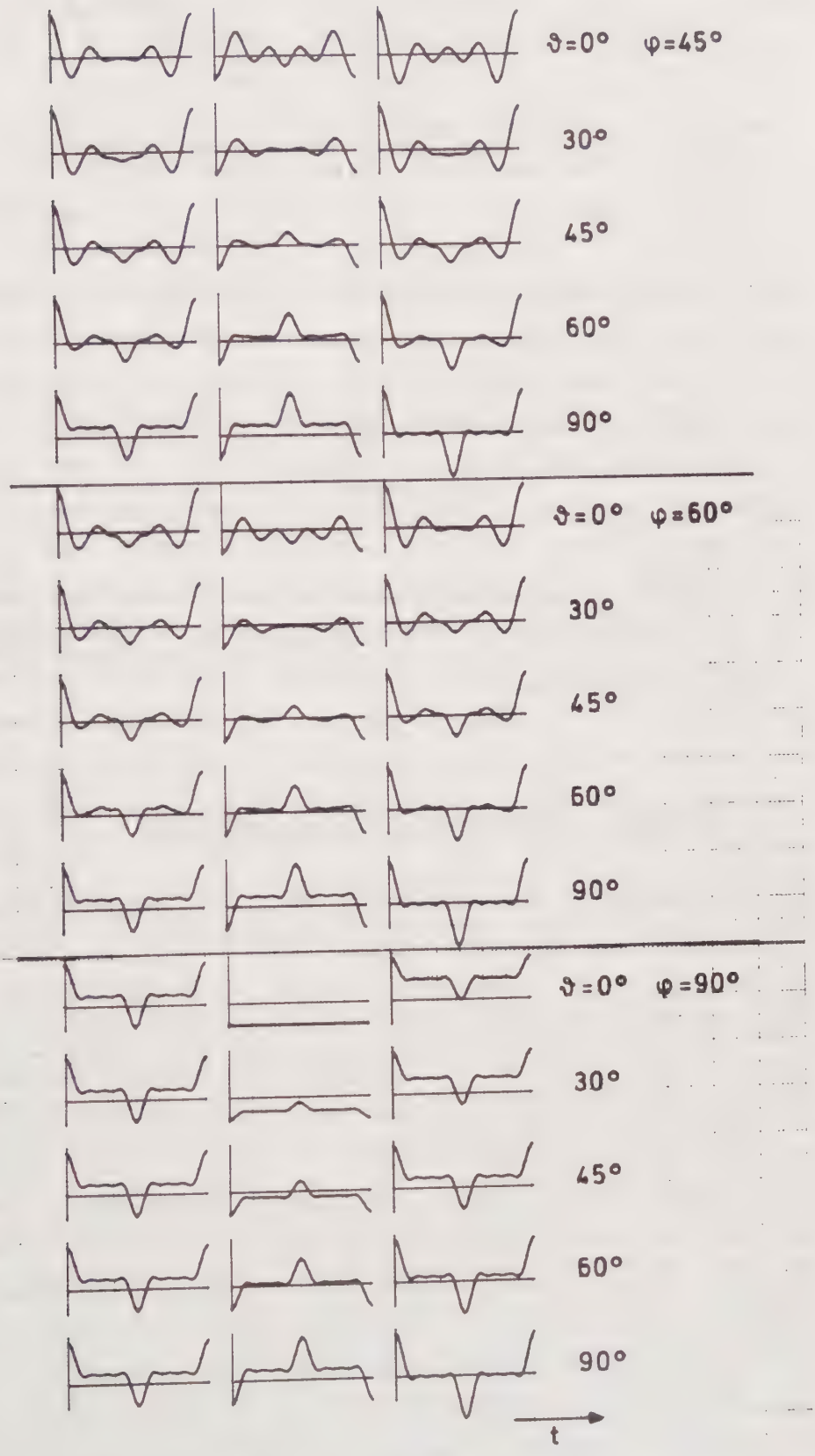


Abb. 5.5

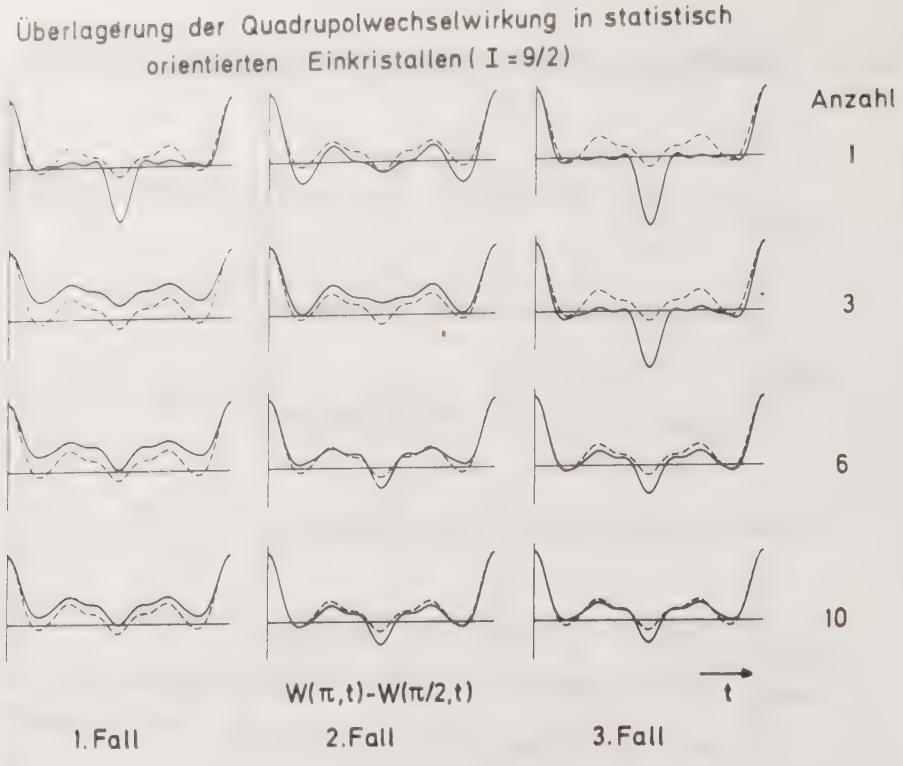


Abb. 5.6:
Konvergenz der Wechselwirkungen im Einkristall gegen die in einer polykristallinen Probe (gestrichelte Kurve) in Abhängigkeit von der Anzahl der beteiligten Kristalle für drei verschiedene Fälle (Anfangsbedingungen).

5.1.3 Alignment, Temperatur und Schichtdicke

In allen Messungen ist nicht das volle Alignment der Zustände im ^{67}Ge bzw. ^{67}Zn gesehen worden. Tab.5.3 zeigt jedoch, daß im günstigsten Fall (Antimon) bis zu 90 % der Sonden eine eindeutige Wechselwirkung sehen. Im Mittel beträgt die gemessene Anisotropie 60 % des maximal zu erwartenden Wertes. Aus Untersuchungen von Quadrupolwechselwirkungen am Beschleuniger in Kadmium und Zink (BBH 72, BRS 74, BLM 74) ist bekannt, daß das Alignment stark temperaturabhängig sein kann; denn in Metallen ist der Ausheilprozeß für Leerstellen und Zwischengitteratome, die im starken Maße für die Amplitudendämpfung verantwortlich sein sollten, ebenfalls stark temperaturabhängig. Da bei einer Implantation gewöhnlich die Atomvolumina von Sonde und Gitteratom unterschiedlich sind, kann dieser Effekt noch verstärkt werden. - Daneben haben Bernas und Mitarbeiter (BRJ 71) in elektronenmikroskopischen Untersuchungen gezeigt,

daß die räumliche Verteilung der in Metallen erzeugten Strahlenschäden nicht mit der der implantierten Ionen übereinstimmen muß: Vielmehr liegen die Schwerpunkte der beiden Verteilungen um etwa 25 % auseinander. Die Größe des gemessenen Alignments im Zinn und Antimon weist darauf hin, daß zumindestens hier nur eine geringe Störung der Sondenumgebung vorgelegen hat, obwohl die Target-Temperaturen teilweise weit unterhalb des Schmelzpunktes der Gastmatrix (z.B. Sb) gelegen haben.

Eine Schwächung der Anisotropie kann aber immer eine mögliche Änderung des auf die Sonde wirkenden Feldgradienten in Größe und Verteilung durch Störstellen der Umgebung bedeuten, wie es speziell bei tiefen Temperaturen der Vergleich der Quadrupolwechselwirkung von ^{111}Cd in Kadmium zwischen dem Präparate- und Beschleunigerexperiment zeigt (BBH 72): Bleck und Mitarbeiter sehen dort bei -190^{0}C einen Unterschied in der Größe des Feldgradienten von etwa 4 %, der auf strahleninduzierte Gitterschäden zurückgeführt wird. Daneben ist bei den Messungen am Beschleuniger mit sinkender Temperatur eine zunehmende Frequenzverteilung sichtbar, die bei 20^{0}C etwa 10 % beträgt; diese Verteilung ist auch für ^{67}Ge-Kerne in Kadmium sichtbar (Tab. 4.7). Es kann daher analog erwartet werden, daß für die Messungen oberhalb 0^{0}C auf die ^{67}Ge-Sonde der ungestörte Feldgradient des Gitters wirkt, so daß ein Vergleich der Kopplungskonstanten mit denen aus anderen Experimenten möglich sein sollte.

Neben der Temperatur beeinflussen jedoch auch die Schichtdicken der Targets die Größe des Alignments. In Tab.5.2 wird die relative gemessene Anisotropie A_2^{exp}/A_2, die ohne Berücksichtigung von Temperatureffekten und Strahlenschäden ein Maß für den Prozentsatz der implantierten Sondenkerne sein sollte, verglichen mit den Ausbeuterechnungen aus Abschnitt 4.1. In nahezu allen Fällen liegt eine Übereinstimmung vor, wenn man bedenkt, daß eine Abweichung der Targetstellung von der angenommenen 45^0-Richtung zum Teilchenstrahl gleichzeitig einer Änderung der effektiven Schichtdicken entspricht; es ist also mit einem Fehler sowohl durch eine falsche Stellung des Targets als auch durch die Schwankung der Schichtdicken bei der Herstellung zu rechnen. Daneben ist zu sehen, daß für die Implan-

Tab.5.2: Vergleich der gemessenen Anisotropie A_2^{exp} mit der nach Abschnitt 4.1 zu erwartenden A_2^{theor} für die einzelnen Schichttargets aus Tab.4.4

Experiment	Target Nr.	Effektive Dicken[1] $D/D_G[\mu g/cm^2]$	A_2^{exp}/A_2[2]	A_2^{theor}/A_2[2]
Ge(Cd)	1	45/140	0,75	0,5 - 0,7
Ge(Cd)	2	120/170	0,46	0,6 - 0,7
Ge(Ga)	3	70/120	0,46	0,4 - 0,6
Ge(In)	4	60/210	0,61	0,8 - 0,9
Ge(In)	5	70/120	0,54	0,4 - 0,6
Ge(Sn)	6	70/120	0,63	0,4 - 0,6
Ge(Sb)	7	70/120	0,86	0,4 - 0,6
Zn(Cd)	8	40/200	0,23	0,6 - 0,8

[1] Es gilt D(effektiv) = D(gedampft)/cosα mit α = 45°

[2] A_2 = 0,28 für ^{67}Ge und A_2 = 0,22 für ^{67}Zn (vgl. Tab.3.1)

tation von ^{67}Ge in Cd Target Nr.2 eine zu dicke Reaktionsschicht besitzt, vergleicht man es mit Nr.1. - Aus dem Rahmen fällt bei diesem Vergleich die Messung der ^{67}Zn-Sonde im Kadmium. Auch bei Berücksichtigung der Targettemperatur läßt es sich schwer erklären, weshalb nur etwa ein Viertel des vollen Alignments sichtbar ist. Neben einer falschen Anfertigung des Schichttargets kommen nur Fehler in der Reichweitenberechnung in Frage, da in erster Näherung sich eine Zn-Sonde ähnlich wie eine Ge-Sonde in einer Kadmium-Matrix verhalten sollte. Tatsächlich weisen die Autoren bei der Berechnung der Reichweiten in Substanzen mit niedrigem Z, wie Kohlenstoff und Sauerstoff, auf Diskrepanzen zu entsprechenden Reichweitemessungen hin (LSS 63); Bestimmungen des Energieverlustes für Ionen von 100 und 200 keV in Kohlenstoff-Folien zeigen für den auftretenden Energieverlust nur den halben Wert, der theoretisch zu erwarten wäre (CBK 73), so daß u.U. die gewählten Schichtdicken für die Gastmatrix zu klein sind.

Zusammenfassend läßt sich der Schluß ziehen, daß die mit Hilfe von Schichttargets durch Implantation erzielten Meßergebnisse soweit analysierbar sind, daß ein Vergleich dieser Quadrupolkopplungskonstanten mit denen aus anderen Messungen im folgenden Abschnitt durchgeführt werden kann.

5.2 Feldgradienten in nichtkubischen Metallen

Mit den Meßergebnissen aus Abschnitt 5.1 (vgl. Tab.5.1) stehen zusammen mit den Literaturwerten die Quadrupolkopplungskonstanten in einer Reihe bereits gut untersuchter nichtkubischer Metalle zur Verfügung. Tab.5.3 zeigt eine Aufstellung dieser polyvalenten Metalle, die alle ein teilweise gefülltes s-p Leitungsband besitzen. Die Zahl der an das Leitungsband abgegebenen Elektronen bestimmt die Valenz (Ionisationsgrad) der Ionen im Metallgitter; dabei verlassen in den einzelnen Fällen 2 bis 5 Elektronen das Atom. Auf Grund ihrer nichtkubischen Gitterstruktur erfahren die Gitteratome einen EFG durch das Coulombfeld der umgebenden Gitterionen. Dieser Gitterbeitrag V_{zz}^{lat} zum Feldgradienten, der bereits in Abschnitt 2.1 diskutiert worden ist, wird für die einzelnen Metalle angegeben ebenso wie die Poisson-Verhältnisse σ; sie werden benötigt, wenn der Einfluß von Fremdatomen auf die Gitterelektronen diskutiert wird. Die Gallium-Matrix findet im folgenden nur eingeschränkt Berücksichtigung, da ihr Feldgradient nicht axialsymmetrisch ist.

In Tab.5.4 sind die Sondenatome aufgeführt, deren Wechselwirkungen in diesen Metallen für die weitere Diskussion benötigt werden. Dabei ergibt sich die bekannte Schwierigkeit, daß nur wenige Quadrupolmomente experimentell direkt zugänglich und die Momente oft nur ihrem Betrage nach bekannt sind. Nachste-

Tab.5.3: Zusammenstellung der betrachteten nichtkubischen, polyvalenten s-p Metalle mit dem Gitteranteil V_{zz}^{lat} (vgl. Gl.(2.1)) zum EFG sowie den Poisson-Verhältnissen σ (LAB 71)

Matrix	Valenz-elektronen	Gitterstruktur	$V_{zz}^{lat}[10^{15}V/cm^2]$	σ
Zink	$4s^2$	hexagonal	-14,0	0,25
Gallium	$4s^2\ 4p^1$	orthorhombisch	-	0,47
Kadmium	$5s^2$	hexagonal	-12,0	0,28
Indium	$5s^2\ 5p^1$	tetragonal	-1,48	0,45
Zinn	$5s^2\ 5p^2$	tetragonal	-1,67	0,33
Antimon	$5s^2\ 5p^3$	hexagonal	-0,20	0,33

Tab. 5.4: Zusammenstellung der Sonden, an denen die diskutierten Quadrupolwechselwirkungen gemessen worden sind. Neben den kernphysikalischen Eigenschaften ist ihr Ionisationsgrad im Metallgitter sowie der Antishielding-Faktor $(1-\gamma_\infty)$ für das entsprechende freie Ion angegeben (FEJ 69).

Sonde	I^π	$T_{1/2}$[nsec]	E_x[keV]	$\|Q\|$[b] [1]		Ionisations-grad	$(1-\gamma_\infty)$ [2]
^{67}Zn	$9/2^+$	333	605	0,20(7)	a)	2^+	13,3
^{69}Ga	$3/2^-$	∞	0	0,19(1)	b)	3^+	10,9
^{67}Ge	$9/2^+$	70	734	0,25(-)	c)	4^+	9,4
^{73}As	$9/2^+$	5820	428	0,3(-)	d)	5^+	8,4
^{111}Cd	$5/2^+$	84	247	0,77(12)	e)	2^+	30,3
^{117}In	$3/2^+$	53	659	0,64(4)	f)	3^+	[25]
^{116}Sn	5^-	370	2376	0,165(60)	g)	4^+	23,3
				0,26(1)	h)		
^{123}Sb	$7/2^+$	∞	0	0,68(10)	i)	5^+	[20]
^{197}Hg	$5/2^-$	7	134	-		2^+	61,2
^{204}Pb	4^+	260	1274	0,56(-)	k)	4^+	51,9

1) Zu den Fehlerangaben vergleiche den Text.
2) Werte in Klammern wurden interpoliert.

a) Ref. BRS 74 b) Ref. FUC 69 c) Ref. SIE 74 d) vgl. Text
e) Ref. RRF 73 f) Ref. RAR 72 g) Ref. KKF 74 h) Ref. DRR 75
i) Ref. MUR 55 k) Ref. HAS 73 —

hend sollen die angegebenen Quadrupolmomente kurz diskutiert werden:

^{69}Ga, ^{117}In, ^{123}Sb - die Momente dieser Sonden können experimentell bestimmt werden (^{117}In über den Vergleich mit dem Grundzustand im ^{115}In).

^{67}Zn - der Wert ist aus Messungen im Zink (BRS 74) sowie aus Rechnungen zur Core-Polarisation (SIE 74) abgeleitet; die Messung in Kadmium legt einen Wert von 0,25 b nahe (vgl. Abschnitt 5.2.4). Entsprechend groß ist daher der Fehler abgeschätzt worden.

^{67}Ge - das Moment ist ebenfalls bei (SIE 74) diskutiert; ein Fehler ist nur schwer bestimmbar und wird im folgenden nicht direkt benötigt.

^{73}As - aus Messungen zum magnetischen Moment (BCM 70) ergibt sich für das unpaarige, angeregte Proton die Konfiguration $(1g9/2)^3$; Vergleiche mit den Quadrupolmomenten der $9/2^+$ Zustände in ^{93}Nb, Q = 0,2 b (SHI 71), und ^{99}Tc, Q = 0,34 b (SHI 71), lassen einen Wert um 0,3 b vermuten.

^{111}Cd - dieser Wert ist abgeleitet aus Messungen in ionischen Gittern durch Vergleich mit dem bekannten Wert für ^{117}In (RRF 73).

^{116}Sn - die Messung von ^{119}Sn in Zinn wird zur Kalibrierung des EFG verwendet und daraus das gesuchte Quadrupolmoment von 0,165 b bestimmt (KKF 74); der zweite Wert ist abgeleitet aus E2-Übergangswahrscheinlichkeiten im ^{116}Sn (DRR 75). Für die weitere Diskussion wird zur Vereinfachung nur ein Wert (0,165 b) benutzt, wobei die Resultate nicht abhängig von dieser Wahl sind.

^{204}Pb - das Moment ist übernommen aus der Arbeit von Haas und Shirley (HAS 73).

In der letzten Spalte der Tabelle sind die zu dem entsprechenden Ionisationsgrad gehörenden Antishielding-Faktoren $(1-\gamma_\infty)$ für freie Ionen angegeben; sie berücksichtigen somit nicht das Gitter, in dem sich die Sonde gerade befindet. Da die Elektronenwellenfunktionen für die Zustände der Gitterionen nicht bekannt sind, muß dieser Fehler in Kauf genommen werden, so daß unter Vernachlässigung des Renormalisierungsfaktors $(1+\delta) \simeq 1$ der durch das Gitter gegebene ionische EFG am Kernort bestimmt wird durch

$$V_{zz}^{ion} = (1-\gamma_\infty) \cdot V_{zz}^{lat} \qquad (5.1)$$

Je nach Sonde können somit die in Tab.5.3 angegebenen Feldgradienten bis zu einem Faktor 50 verstärkt werden und maximal Werte bis zu $7 \cdot 10^{17}$ V/cm^2 (Pb(Zn)) erreichen; im Mittel werden sie allerdings in der Größenordnung von einigen 10^{16} V/cm^2 liegen.

Tab. 5.5: Quadrupolkopplungskonstanten in nichtkubischen s-p Metallen. - In Klammern ist jeweils die Temperatur in °C angegeben, soweit die Messungen nicht für 20°C gelten.

Sonde	Matrix: valenz	Zn 2	Cd 2	In 3	Sn 4	Sb 5	Ga 3
				[MHz]			
^{67}Zn	2	45,5[a]	39,5[b]	-	-	-	-
^{111}Cd	2	134, [c]	123, [d]	17,3[e]	36,0[f]	70,7[f]	-
^{197}Hg	2	31,2[g]	21,7[g]	-	-	-	-
^{69}Ga	3	-	-	-	-	-	21,9[h] (-20°)
^{117}In	3	-	143, [f]	21, [f]	62, [f]	-	-
^{67}Ge	4	106,3[i]	59,5[b]	25,3[b]	39,7[b] (175°)	20,3[b] (195°)	86,4[2] (-20°)
^{116}Sn	4	-	54,7[k] (200°)	-	25,0[l]	19,2[1]	-
^{204}Pb	4	-	118, [f]	41,0[f]	71,2[f]	33,3[f]	-
^{73}As	5	20,2[m] (380°)	-	-	-	-	-
^{123}Sb	5	-	-	-	-	85,1[n] (195°)	-

1) Wert aus ^{118}Sn(Sb) mit Hilfe des Verhältnisses der Kopplungskonstanten in Sn: ^{116}Sn/^{118}Sn = 1,60[l]

2) Wert aus ^{69}Ge(Ga) mit Hilfe des Verhältnisses der Kopplungskonstanten in Zn ^{67}Ge/^{69}Ge = 1,22 (HLM 73)

a) Ref. BRS 74 b) diese Arbeit c) Ref. RRK 74 d) Ref. RAR 71
e) Ref. BOF 72 f) Ref. HAS 73 g) Krien et al. in KAW 74 h) Ref. VAW 69
i) Ref. BLM 74 k) Ref. DRR 75 l) Ref. KKF 74 m) Shroy et al. in KAW 74
n) Ref. HEW 63

Die Quadrupolkopplungskonstanten $\nu_Q = eQV_{zz}/h$, bezogen auf 20°C, die mit diesen Sonden gemessen worden sind, faßt Tab.5.5 zusammen. Waren Werte für diese Temperatur nicht vorhanden, so ist es in Klammern vermerkt. Da im weiteren Verlauf immer die Verhältnisse zweier Kopplungskonstanten gebildet werden, sollten diese nach Möglichkeit bei derselben Temperatur gemessen sein. Zusätzlich hängt das Verhältnis aber vom absoluten Temperaturwert ab, solange der Temperaturverlauf für die beiden Wechselwirkungen nicht ähnlich ist. Weil hierüber bisher nur wenig Information vorliegt, muß dieser Punkt im folgenden

unberücksichtigt bleiben. Die Fehler für die einzelnen Messungen schwanken zwischen 1 % und 5 %; dabei ist berücksichtigt, daß ein Teil der Frequenzen Temperaturkurven entnommen worden ist. Zusätzlich ist für die einzelnen Sonden ihre Valenz Z angegeben, da der Einfluß der Fremdatome auf den EFG an Hand der Valenzdifferenz $\Delta Z = Z - Z_M$ studiert werden soll (Z_M = Valenz der Matrix); sie ist verbunden mit einer Ladungsdifferenz zwischen der Sonde und ihrer Umgebung: Durch das Einführen eines Fremdatoms wird einmal auf Grund der unterschiedlichen Kernladung das Potential für die Elektronen der Gastmatrix in unmittelbarer Nachbarschaft der Sonde verändert, so daß freie Elektronen in gebundene Zustände übergehen können oder gebundene Elektronen ins Leitungsband abgegeben werden (FRI 58); zusätzlich ist die Dichte der Elektronen um das Fremdatom herum verändert. Solche Phänomene sind u.a. bekannt durch Messung der Knight-Shift an Fremdatomen (RIF 67) und Messung von Änderungen des Restwiderstandes in Metallen in Abhängigkeit der Fremdatom-Konzentration (TRF 73).
Dabei hat es sich gezeigt (FTH 70), daß durch die unterschiedlichen Atomvolumina von Sondenatom V und Matrixatom V_M, mit $V = V_M(1+\beta)$, eine Verformung der Gitterzellen eintritt und damit verbunden eine Veränderung der mittleren Dichte der Leitungselektronen; so wird bereits ein Teil der durch das Fremdatom eingeführten Überschußladung abgeschirmt. Gleichzeitig verkleinert sich die Valenzdifferenz ΔZ um $Z_M \cdot \beta$ auf

$$\delta Z = \Delta Z - Z_M \cdot \beta = Z - Z_M(1+\beta) \qquad (5.2)$$

Dabei läßt sich der Bruchteil der Volumenänderung ausdrücken mit Hilfe des Poisson-Verhältnisses σ des betreffenden Gitters, da σ gerade ein Maß für dessen Elastizität darstellt

$$\beta = \frac{1}{3}(1+\sigma)/(1-\sigma) \cdot (V-V_M)/V_M \qquad (5.3)$$

Weil die Abschirmung der Überschußladung zum größten Teil innerhalb der Gitterzelle des Fremdatoms erfolgt (FLY 72), sollte nach Gl.(2.2) ein Einfluß der Valenzdifferenz auf den elektro-

nischen Anteil des EFG

$$V_{zz}^{el} = (1-R) \cdot V_{zz}^{loc} \qquad (5.4)$$

zu erwarten sein.

5.2.1 Vergleich der Wechselwirkungen von Sondenpaaren

Wie bereits erwähnt, besteht in den meisten Fällen keine Möglichkeit, direkte Aussagen über die Feldgradienten an Hand der gemessenen Quadrupolkopplungskonstanten zu erhalten. Auf der anderen Seite hat die Diskussion der Quadrupolmomente aus Tab.5.4 deren Unsicherheit gezeigt. Dennoch soll versucht werden, aus den Meßwerten in Tab.5.5 Aussagen über die relative Änderung zweier EFG in Abhängigkeit von den gewählten Sonden und Matrizen zu gewinnen, ohne irgendwelche Annahmen über die dabei vorkommenden Momente zu machen: Bildet man für zwei Sonden, z.B. ^{67}Ge (Sonde 1) und ^{111}Cd(Sonde 2), das Verhältnis ihrer Quadrupolkopplungskonstanten nacheinander in verschiedenen Matrizen (M), so ist eine Änderung dieses Verhältnisses nur durch eine Änderung der effektiven EFG am Ort der beiden Sonden möglich

$$\frac{(eQV_{zz}(M))_1}{(eQV_{zz}(M))_2} = C_Q \frac{V_{zz}^1}{V_{zz}^2}(M) \qquad (5.5)$$

Diese Verhältnisse sind in Tab.5.6 gebildet und graphisch in Abb.5.7 für 7 Sondenpaare aufgetragen. Die "größer"- und "kleiner"-Zeichen in Tab.5.6 berücksichtigen die in diesem Fall unterschiedlichen Temperaturen der Meßwerte. Ein Vergleich der Reihen A bis G zeigt für die Reihen A, B und C eine Änderung des aufgetragenen Verhältnisses beim Wechsel der Matrix, während E, F und G innerhalb von 10 % konstant bleiben. Die Gruppen unterscheiden sich dadurch, daß im ersten Fall beide Sonden unterschiedliche Valenzen besitzen ($Z_1 \neq Z_2$), während im zweiten Fall die Valenzen gleich sind ($Z_1 = Z_2$). In keine der beiden Gruppen einzuordnen ist die Reihe D, die "zu große" Schwankungen für ein isovalentes Sondenpaar aufweist, jedoch

Tab. 5.6: Verhältnis der Quadrupolkopplungskonstanten eQV_{zz}/h je zweier Sonden in nichtkubischen s-p Metallen (Abb. 5.7)

Sondenpaar	Matrix: Valenzen	Zn	Cd	In	Sn	Sb	Reihe (Abb.5.7)
$^{67}Ge/^{111}Cd$	(4/2)	0,79	0,48	1,46	>1,10	>0,29	A
$^{67}Ge/^{117}In$	(4/3)	-	0,42	1,20	>0,64	-	B
$^{67}Ge/^{204}Pb$	(4/4)	-	0,50	0,62	>0,56	>0,61	E
$^{67}Zn/^{111}Cd$	(2/2)	0,34	0,32	-	-	-	F
$^{111}Cd/^{117}In$	(2/3)	-	0,86	0,82	0,58	-	C
$^{197}Hg/^{111}Cd$	(2/2)	0,23	0,18	-	-	-	G
$^{116}Sn/\ ^{67}Ge$	(4/4)	-	>0,92	-	<0,63	<0,95	D

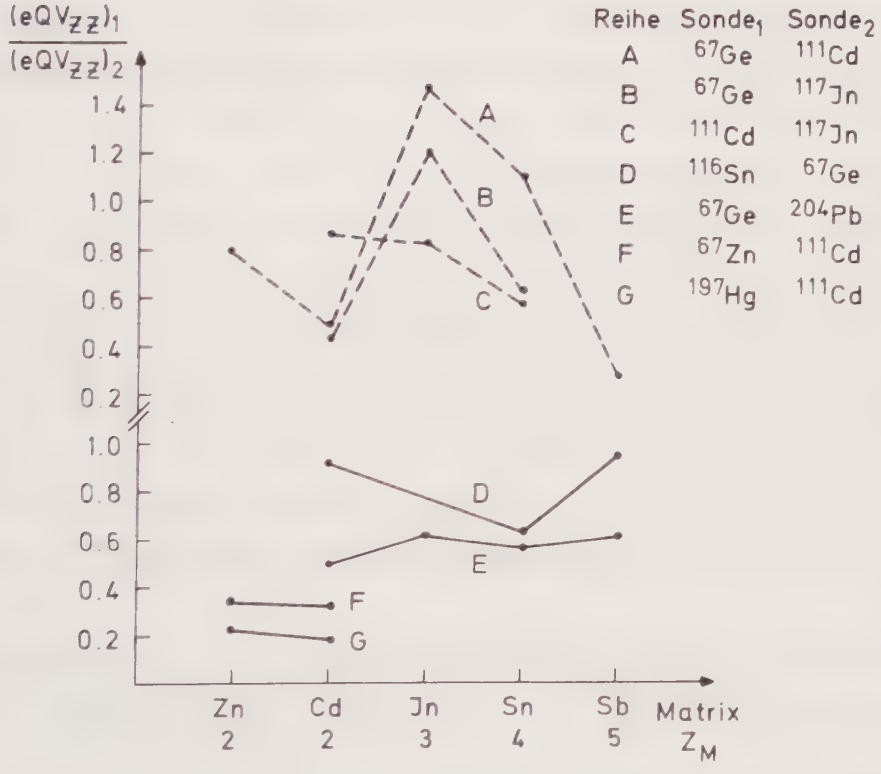


Abb. 5.7:
Verhältnis der Quadrupolkopplungskonstanten eQV_{zz}/h für jeweils zwei Sonden in verschiedenen Matrizen.

kleinere als für nicht isovalente Sonden. Eine Erklärung hierfür könnte das Verhalten des Sn-Gitters bieten, das neben dem in Tab.4.3 angegebenen Umwandlungspunkt ($T = 13^0C$) einen weiteren Übergangspunkt bei $T = 160^0C$ besitzt (GME 59, Zinn); deshalb haben u.U. die Messungen Ge(Sn) und Sn(Sn) in unterschiedlichen Sn-Gittern stattgefunden. Die beiden Reihen A und E, die Verhältnisse für fünf bzw. vier verschiedene Matrizen enthalten, können jedoch als gute Vertreter dieser beiden Gruppen angesehen werden.

Würde das Gitter der dominierende Teil des resultierenden EFG sein, so müßten alle Reihen horizontal verlaufen, da in allen Matrizen das gebildete Verhältnis nach Gl.(5.1) durch die gitterunabhängigen Konstanten Q_i und $(1-\gamma_\infty)_i$ der beiden Sonden bestimmt wäre. Auf der anderen Seite bedeutet $Z_1 \neq Z_2$ bzw. $Z_1 = Z_2$ für die Sondenpaare, daß die Valenzdifferenz zwischen je einer Sonde und der Matrix $\Delta Z_i = Z_i - Z_M$ im ersten Fall für die beiden Sonden in jeder Matrix verschieden ist, während sie im zweiten Fall gleich ist. Es läßt sich Gl.(5.5) also darstellen als

$$\frac{V^1_{zz}}{V^2_{zz}}(M) = C'_Q \cdot \frac{f_o(\Delta Z_1)}{f_o(\Delta Z_2)} + f_1(M) \qquad (5.6)$$

wobei der zweite Summand klein gegen den ersten sein sollte. Dabei ließen sich die kleinen Schwankungen für die isovalenten Sondenpaare noch darauf zurückführen, daß infolge der unterschiedlichen Volumen-Korrektur (5.3) auch in diesem Fall die Valenzdifferenzen δZ_i etwas voneinander abweichen (vgl. Abschnitt 5.2.2). Ein Vergleich mit der Parametrisierung des EFG (2.2)

$$V_{zz} = V^{el}_{zz} + V^{ion}_{zz}$$

legt eine Interpretation der Funktion f_o durch den elektronischen Anteil des Feldgradienten nahe. Mit der Annahme

$$(a) \quad |V^{el}_{zz}| >> |V^{ion}_{zz}|$$

ergibt sich die folgende Abhängigkeit

$$(b) \quad V_{zz}^{el} \sim f_o(\Delta Z)$$

Die Annahme (a) ist gestützt durch die zahlreichen Messungen in diesen Matrizen, vergleicht man die ionischen Feldgradienten der einzelnen Matrizen mit den effektiven Feldgradienten, die in der Größenordnung von $5 \cdot 10^{17}$ V/cm^2 liegen. Dasselbe Ergebnis haben theoretische Berechnungen von V_{zz}^{el} in s-p Metallen (z.B. MSD 73) gezeigt. Den Einfluß der Valenzdifferenz ΔZ auf V_{zz}^{el} hat bereits Sielemann an Hand einer Analyse, wie sie in Abschnitt 2.2.2 beschrieben wird, gezeigt (SIE 74). Eine Prüfung der Folgerung (b) soll durch weitere Implantationen u.a. mit der ^{67}Zn-Sonde erfolgen, die eine Fortsetzung der Reihe F mit der gut untersuchten Sonde ^{111}Cd ermöglichen werden.

Eine direkte Analyse der Meßergebnisse von Quadrupolwechselwirkungen deutet also an, daß eine Änderung des effektiven Feldgradienten in Abhängigkeit von der Valenzdifferenz ΔZ zwischen Sonde und Matrix erfolgt; die konstanten Verhältnisse für isovalente Sonden in verschiedenen Matrizen lassen vermuten, daß nicht die einzelne Sonde oder das spezielle Gitter für die Größe dieser Änderung charakteristisch ist, sondern beide zusammen auf Grund ihrer Valenzdifferenz. Die Abhängigkeit sollte deutlicher werden, betrachtet man die Feldgradienten jeweils für eine feste Sonde oder ein festes Gitter als Funktion von ΔZ.

5.2.2 Änderung des Feldgradienten an einer festen Sonde in verschiedenen Matrizen

Hier soll versucht werden, die Änderung des EFG in verschiedenen s-p Metallen durch Einführen desselben Fremdatoms als Funktion der Valenzdifferenz δZ zu untersuchen: Tab.5.7 zeigt für die einzelnen Matrizen den Betrag des Feldgradienten des ungestörten Gitters (Matrix - V_{zz}), z.B. in Zink, und den am

Tab.5.7: Verhältnis R des effektiven EFG V_{zz} in s-p Metallen an dem Fremdatom ^{67}Ge zu dem EFG am jeweiligen Matrixatom V^{M}_{zz} in Abhängigkeit von der Valenzdifferenz δZ zwischen Fremdatom und Matrix (Abb.5.8). Die Feldgradienten sind hergeleitet aus den Quadrupolmomenten in Tab.5.4 und den Quadrupolkopplungskonstanten in Tab.5.5.

Matrix	Z	Matrix-atom	Matrix-V_{zz} [10^{17}V/cm^2]	Fremdatom-V_{zz} [10^{17}V/cm^2]	δZ	R
Zn	2	^{67}Zn	9,4	17,6	+1,45	1,9(7)
Ga	3	^{69}Ga	4,8 (η=0,171)	14,3 (η=0,697)	+0,60	3,0(2)
Cd	2	^{111}Cd	6,6	9,8	+1,95	1,5(2)
In	3	^{117}In	1,4	4,2	+1,30	3,0(2)
Sn	4	^{116}Sn	6,3	6,6	+0,45	1,05(40)
Sb	5	^{123}Sb	5,2	3,4	-0,15	0,65(10)

Ort des Fremdatoms ^{67}Ge (Fremdatom-V_{zz}). Die Valenzdifferenz δZ ergibt sich aus Gl.(5.2) und (5.3) mit Hilfe der Werte für σ aus Tab.5.3. Das Atomvolumen V wird dabei mittels des Atomgewichtes A und der Dichte ρ nach $V = A/\rho$ berechnet. In der letzten Spalte ist das Verhältnis

$$R = V^{67Ge}_{zz}/V^{M}_{zz}$$

für die einzelnen Matrizen aufgeführt. Damit wird der Feldgradient am Ort des Fremdatoms auf den Wert des ungestörten Feldgradienten normiert. In Abb.5.8 sind die Verhältnisse R als Funktion von δZ aufgetragen. Die eingezeichneten Fehlerbalken werden bedingt durch die Unsicherheit für die Quadrupolmomente der Sonden der reinen Matrix. Ein Fehler im Moment der Sonde ^{67}Ge dagegen wirkt sich auf alle Punkte gleichmäßig in einer Verschiebung längs der Ordinate aus. Selbst unter Berücksichtigung der Fehlerbalken zeigt sich noch eine systematische Änderung des EFG am Ort des Fremdatoms.
Außerdem sind die Verhältnisse S der Antishielding-Faktoren für die Ge-Sonde und die der betreffenden Matrizen eingezeichnet; sie ergeben keinen systematischen Einfluß auf die Verhältnisse R: So ist das Verhältnis R für Ga und In, sowie für Zn und Cd nahezu gleich, während S sich jeweils um einen Fak-

$$R = V_{zz}^{67Ge} / V_{zz}^{M}$$

$$S = (1-\gamma_\infty)^{Ge} / (1-\gamma_\infty)^{M}$$

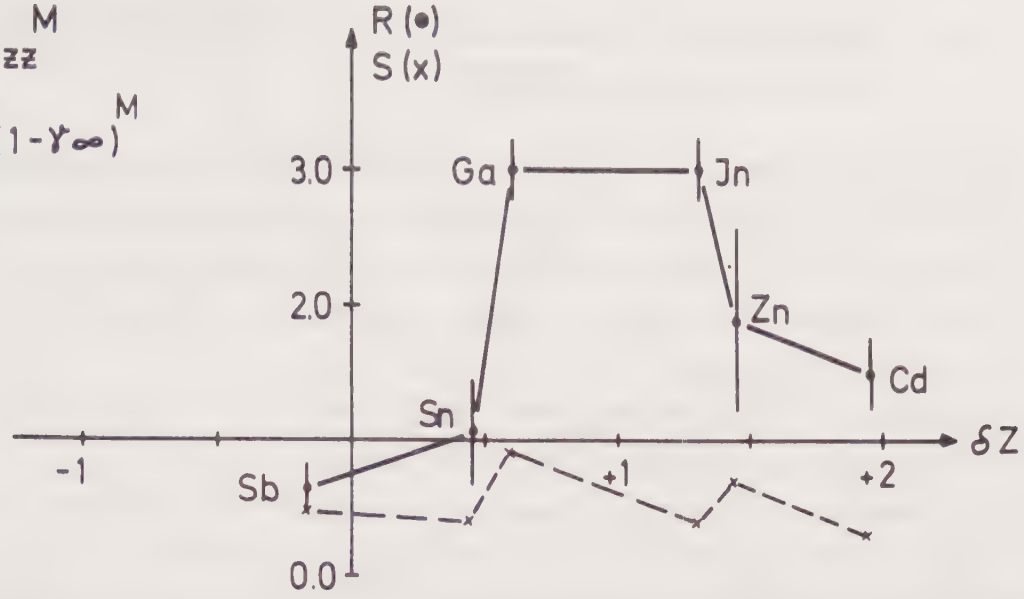


Abb. 5.8:
Relatives Verhältnis R des Feldgradienten V_{zz} am Ort einer ^{67}Ge-Sonde zu dem der ungestörten Matrix M als Funktion ihrer Valenzdifferenz δZ. Gleichzeitig ist das Verhältnis S der entsprechenden Antishielding-Faktoren $(1-\gamma_\infty)$ aufgetragen.

tor 2.5 ändert. Problematisch ist allerdings die Aufnahme von Gallium in diese Graphik, da sich in diesem Gitter mit der Sonde auch der Wert für η verändert (vgl. Abschnitt 4.3.3), so daß eine eindeutige Aussage über die z-Komponente des EFG nicht mehr möglich ist.

Es scheint sich jedoch anzudeuten, daß für $\delta Z > 0$ eine Verstärkung des EFG ($R > 1$) und für $\delta Z < 0$ eine Abschwächung am Ort des Fremdatoms auftritt. Mit der Annahme (a) des vorhergehenden Abschnittes, die durch den nicht zu erkennenden Einfluß der Antishielding-Faktoren unterstützt wird, läßt sich das Verhältnis R auffassen als

$$R \approx \frac{V_{zz}^{el\,^{67}Ge}}{V_{zz}^{el\,M}} = f(\delta Z)$$

es ändert sich also im selben Gitter der Feldgradient am Sondenort, was nicht durch den Gitteranteil erklärbar ist, dagegen aber einen Zusammenhang mit der Valenzdifferenz zeigt.

5.2.3 Änderung des Feldgradienten in einer festen Matrix für verschiedene Sonden

Unter Normierung auf den Wert des EFG für die ungestörte Matrix kann in analoger Weise zum vorangegangenen Abschnitt die Änderung des Feldgradienten für eine feste Matrix an verschiedenen Sonden betrachtet werden. Dadurch wird geprüft, ob das in Abb.5.8 gezeigte Verhalten sensitiv auf δZ ist oder nur zufällig für die verwendete Sonde zutrifft. Dafür sind in Tab. 5.5 die gemessenen Quadrupolkopplungskonstanten in die entsprechenden Feldgradienten für die fünf betrachteten Matrizen umgerechnet worden mit der bekannten Unsicherheit durch die Quadrupolmomente. Tab.5.8 zeigt eine Zusammenstellung dieser Werte, und in Tab.5.9 sind für die einzelnen Metalle die Feldgradienten an den Fremdatomen (V_{zz}) in Einheiten des Feldgradienten der ungestörten Matrix (V_{zz}^M) mit den dazugehörigen Valenzdifferenzen δZ aufgeführt. Abb.5.9 zeigt für alle fünf Matrizen die entsprechenden Verhältnisse R über δZ. Die Unsicherheit für R ist in diesem Fall durch die Unsicherheit für

Tab. 5.8: Beträge der Feldgradienten in nichtkubischen s-p Metallen, abgeleitet aus den Tab. 5.4 und 5.5. - In Klammern sind die Temperaturen in °C angegeben, soweit die Werte nicht für 20°C gelten.

Sonde \ Matrix:	Zn	Cd	In	Sn	Sb
	$V_{zz}[10^{17}V/cm^2]$				
^{67}Zn	9,4	8,2	-	-	-
^{111}Cd	7,2	6,6	0,9	1,9	3,8
^{117}In	-	9,2	1,4	4,0	-
^{67}Ge	17,6	9,8	4,2	6,6 (175°)	3,4 (195°)
^{116}Sn	-	13,7	-	6,3	4,8
^{204}Pb	-	8,7	3,0	5,3	2,5
^{73}As	2,8 (380°)	-	-	-	-
^{123}Sb	-	-	-	-	5,5[1]

[1] Für T = 20°C ist eQV_{zz}/h = 91,27 MHz (HEW 63)

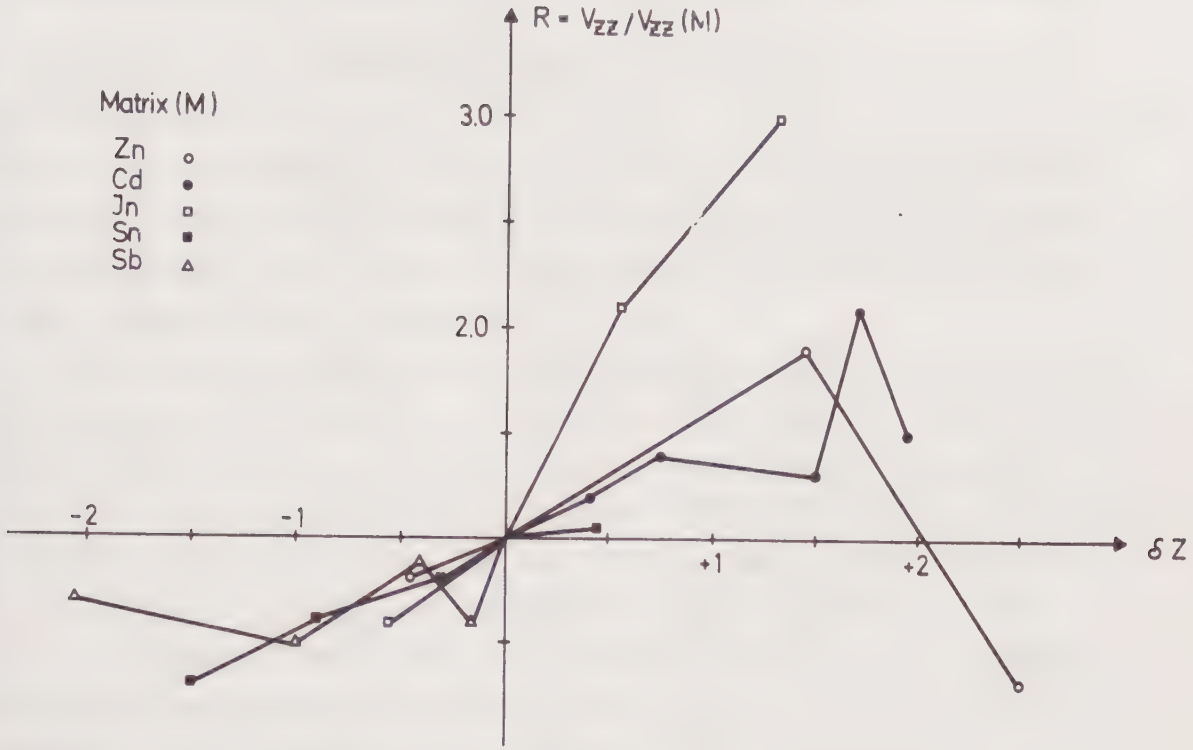


Abb. 5.9:
Relative Änderung R der Feldgradienten V_{zz} für eine feste Matrix M als Funktion der Valenzdifferenz δZ zwischen Sonde und Matrix.

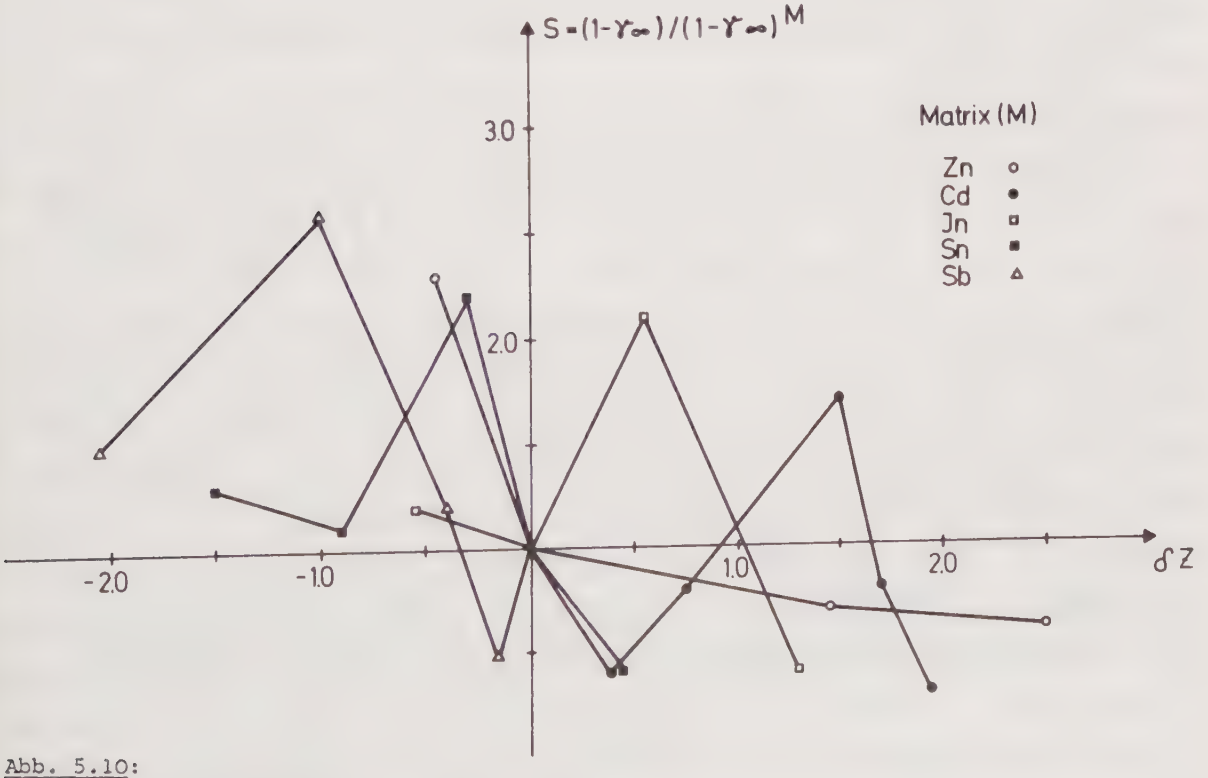


Abb. 5.10:
Verhältnis S der Antishielding-Faktoren $(1-\gamma_\infty)$ für verschiedene Sonden in jeweils einer Matrix M als Funktion von δZ.

Tab. 5.9: Vergleich der relativen Feldgradienten R in verschiedenen Matrizen M als Funktion der Valenzdifferenz δZ (Abb. 5.9). - S ist das Verhältnis der entsprechenden Antishielding-Faktoren (Abb. 5.10).

Matrix	Sonde	δZ	$R = V_{zz}/V_{zz}^{M}$	$S = \frac{(1-\gamma_\infty)}{(1-\gamma_\infty)_M}$
Zn (o)	^{111}Cd	-0,45	0,8	2,3
	^{67}Ge	1,45	1,9	0,7
	^{73}As	2,50	0,3	0,6
Cd (•)	^{67}Zn	0,40	1,2	0,4
	^{117}In	0,75	1,4	0,8
	^{204}Pb	1,50	1,3	1,7
	^{116}Sn	1,70	2,1	0,8
	^{67}Ge	1,95	1,5	0,3
In (□)	^{111}Cd	-0,55	0,6	1,2
	^{204}Pb	0,55	2,1	2,1
	^{67}Ge	1,30	3,0	0,4
Sn (■)	^{111}Cd	-1,50	0,3	1,3
	^{117}In	-0,90	0,6	1,1
	^{204}Pb	-0,30	0,8	2,2
	^{67}Ge	0,45	1,0$_5$	0,4
Sb (△)	^{111}Cd	-2,05	0,7	1,5
	^{204}Pb	-1,00	0,5	2,6
	^{116}Sn	-0,40	0,9	1,2
	^{67}Ge	-0,15	0,6	0,5

das Quadrupolmoment des Fremdatoms bestimmt, während das der matrixeigenen Sonde nur als Skalenfaktor wirkt. Auf Grund der zahlreichen Beispiele soll hier jedoch auf Fehlerbalken verzichtet werden.

Es spiegelt sich in allen Gittern der Trend wieder, daß für $\delta Z > 0$ eine Verstärkung des Feldgradienten am Ort des Fremdatoms hervorgerufen wird, während für $\delta Z < 0$ eine Abschwächung vorliegt. Als einziger Wert fällt der Wert für ^{73}As in Zn heraus, der auch für $\delta Z > 0$ eine Abschwächung des EFG am Ort der ^{73}As-Sonde zeigt. Auf Grund dieses einzelnen Punktes ist es jedoch nicht möglich zu entscheiden, ob die Wechselwirkung der As-Sonde nicht richtig interpretiert ist oder ob für große δZ-Werte tatsächlich wieder eine Abschwächung von R vorliegt (vgl. SIE 74). Abb.5.10 zeigt das Verhältnis S der entsprechenden Antishielding-Faktoren. Der hier sichtbare Trend läßt jedoch keinerlei Übereinstimmung mit Abb.5.9 erkennen.

5.2.4 Was bestimmt die Größe des effektiven Feldgradienten?

Eine Antwort auf diese Frage würde die quantitative Deutung der durchgeführten Analysen innerhalb eines allgemeinen Ansatzes zur Berechnung von Feldgradienten in Metallen voraussetzen. Solche allgemeinen Ansätze existieren jedoch bisher nur punktuell (z.B. Cd(Cd)) und gehen dort von der Existenz eines ungestörten Metallgitters aus.
Um die Größe der gemessenen Feldgradienten reproduzieren zu können, gibt es im wesentlichen zwei theoretische Vorstellungen: Beide ergeben, daß die Leitungselektronen den wesentlichen Beitrag zum EFG leisten, dessen relatives Vorzeichen entgegengesetzt ist zu dem des Gitterbeitrages (vgl. Abschnitt 2.1), Während jedoch von Mohapatra und Mitarbeitern (MSD 72, MSD 73) gezeigt wird, daß alle Zustände des Leitungsbandes zum Feldgradienten beitragen können, stellen Watson und Mitarbeiter (WGY 65) eine lineare Beziehung her zwischen der Dichte der Leitungselektronen nur an der Fermikante und dem elektrischen Feldgradienten. Dabei wird angenommen, daß unter bestimmten Voraussetzungen die restlichen Größen, wie z.B. die räumliche Verteilung der Elektronen, gleichzeitig als konstant angesehen werden können. Beide Ansätze erklären jedoch qualitativ, daß eine Änderung der Elektronenstruktur in unmittelbarer Umgebung der Sonde deutlich die Größe des EFG verändert, wie es in den vorausgegangenen Abschnitten zu erkennen gewesen ist.

Die Sonde, die hier gewöhnlich ein Fremdatom ist, beeinflußt die Bandstruktur der Gastmatrix in der Weise, daß das Gitterpotential verändert wird (Ladungsabschirmung) und dabei ungefüllte Bänder mit zusätzlichen Elektronen besetzt werden können (FLY 72). Die Störung der Elektronenstruktur des Metalls läßt sich durch eine Streuung der Leitungselektronen an dem durch das Fremdatom erzeugten Potential beschreiben; dabei wird die Streuung durch eine drehimpulsabhängige Phasenverschiebung der Elektronenwellenfunktion ausgedrückt. Die Friedelsche Summenregel (Gl.(2.3)) stellt einen Zusammenhang zwischen der abzuschirmenden Überschußladung δZ und den Streupha-

sen η_i her. Die innerhalb dieses Modells diskutierten Änderungen der Knightshift (RIF 67) sowie des Restwiderstandes (FLY 72) für Fremdatome in polyvalenten Metallen zeigen ähnliche Einflüsse durch δZ, wie sie in Abb.5.9 zu sehen sind.
Um dieses Modell zur Erklärung der relativen Änderung des Feldgradienten heranziehen zu können, versucht Sielemann (SIE 74), im Ansatz von Watson die Zustandsdichte an der Fermikante mit der Ableitung der impulsabhängigen Streuphasen an der Fermikante zu verbinden: Die relative Änderung des EFG wird proportional zur Änderung der Ladungsdichte an der Fermikante, und das Vorzeichen für die Ableitung der Streuphasen bestimmt, ob eine Abschwächung oder Verstärkung des EFG vorliegt. Eine schematische Darstellung dieser Ableitung als Funktion von δZ zeigt einen ähnlichen Verlauf, wie er in Abb.5.8 sichtbar ist. Es ist jedoch nicht zu erwarten, daß sich in den hier betrachteten polyvalenten Metallen die Zustandsdichte bis zu einem Faktor 3 ändert, wie es einer relativen Änderung des EFG entspräche, oder daß die räumliche Verteilung der Elektronen, wie sie durch die Radialwellenfunktionen beschrieben wird, konstant bleibt bei einem Wechsel der Sonden von Cd bis Sb. Ändert sich jedoch auch dieser Teil im Modell von Watson, dann fehlt die eindeutige Zuordnung zwischen Ladungsdichte und Feldgradienten, die dieser Ansatz zur Voraussetzung hat.

Die hier gezeigten relativen Änderungen des EFG, die auf eine Abhängigkeit von Gitter und Sonde hinweisen, stehen im Gegensatz zu Untersuchungen im Cd-In System: Brandt und Rosenblum (BRR 73), Bodenstedt und Mitarbeiter (BOE 72) sowie Butt und Mitarbeiter (BHR 74) schließen aus der Form für die Temperaturabhängigkeit der Wechselwirkungsstärken in diesen beiden Gittern, daß der EFG hauptsächlich durch das Gastgitter bestimmt wird: Der Verlauf der gemessenen Temperaturkurven ist für beide Sonden jeweils identisch im gleichen Gitter. Das steht in Übereinstimmung mit der Reihe C in Abb.5.7, die für diese beiden Sonden in den Matrizen Cd und In konstante Verhältnisse zeigt, obwohl die Sonden nicht isovalent sind. Es ist jedoch leicht zu sehen, daß dieses konstante Verhältnis

durch eine gegenläufige Änderung der effektiven EFG an den beiden Sonden im Kadmium- und Indium-Gitter kompensiert werden kann: Tab.5.9 zeigt, daß für ^{117}In(Cd) eine Verstärkung (R = 1,4) und für ^{111}Cd(In) eine Abschwächung (R = 0,6) des relativen EFG vorliegt. Geht man die Reihe C weiter, sieht man für Sn eine Abweichung von der ursprünglichen Konstanz der Verhältnisse. Da außerdem bisher die Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung nur empirisch interpretiert werden kann (Heubes und Mitarbeiter in KAW 74), ist eine Folgerung hieraus auf bestimmende Mechanismen des EFG sicher nicht eindeutig. Eine Prüfung dafür könnte z.B. eine Erweiterung der Temperaturkurve für ^{67}Ge(In) sein, deren Verlauf mit den anderen zu vergleichen wäre.

Dagegen läßt das Verhalten der isovalenten Sonden ^{67}Zn und ^{111}Cd im Zn-Cd System erwarten, daß hier die Feldgradienten innerhalb einer Matrix für beide Sonden nahezu gleich sind. Mit Q = 0,77 b für ^{111}Cd ergibt sich für das Quadrupolmoment der ^{67}Zn-Sonde

$$Q(^{67}Zn) = 0{,}33 \cdot Q(^{111}Cd) = 0{,}25 \text{ b}$$

unter der Voraussetzung eines entsprechend konstanten Verlaufes der Reihe F in Abb.5.7.

Diese letzten Beispiele haben deutlich gemacht, daß eine systematische Fortführung der Implantationsexperimente, wie sie in dieser Arbeit beschrieben worden sind, hoffen läßt, in der Klärung der Probleme mit den elektrischen Feldgradienten weiter voran zu kommen.

A n h a n g

A1. Quadrupolwechselwirkung im Einkristall (AAH 53)

Nach (FRS 65) ergibt sich für die gestörte Winkelkorrelation

$$W(\vec{k}_1,\vec{k}_2,t) = \sum_{\substack{k_1,k_2\\N_1,N_2}} A_{k_1}(1)A_{k_2}(2)G^{N_1N_2}_{k_1k_2}(t)((2k_1+1)(2k_2+1))^{-1/2} \cdot Y^{N_1*}_{k_1}(\theta_1,\phi_1)\, Y^{N_2}_{k_2}(\theta_2,\phi_2) \qquad (A1.1)$$

Dabei gilt für die reine magnetische oder elektrische Wechselwirkung (axialsymmetrischer Feldgradient) $N_1 = N_2 = N$; die Indizes k_i nehmen nur gerade Werte an und es soll gelten $k_i < 4$

$$W(\vec{k}_1,\vec{k}_2,t) = \sum_{k=0}^{2} \sum_{N=-k}^{+k} A_{kk}(2k+1)^{-1}G^{N}_{kk}(t) \cdot Y^{N*}_{k}(\theta_1,\phi_2)\, Y^{N}_{k}(\theta_1,\phi_2) \qquad (A1.2)$$

Die Winkel θ_i und ϕ_i sind definiert in Abb.5.4b (S.75), wobei die Quantisierungsachse in z-Richtung liegen soll. Betrachtet wird die Abhängigkeit von Gl.(A1.2) für die zwei speziellen Fälle, daß die Winkel zwischen $\vec{K}_1$ und $\vec{K}_2$ (a) 180^0 und (b) 90^0 bilden. Das entspricht der Meßanordnung, in der die Richtungen $\vec{K}_1$ durch den Teilchenstrahl und $\vec{K}_2$ durch die Beobachtungsrichtung für jeweils einen γ-Detektor gegeben sind. Die Abhängigkeit von den Polarwinkeln ϕ_i reduziert sich auf einen Relativwinkel $\phi_1-\phi_2$.

- (a) $\sphericalangle(\vec{K}_1,\vec{K}_2) = 180^0$: Es folgt

$$\cos(180^o) = \cos(\phi_1-\phi_2)\sin\theta_1\sin\theta_2+\cos\theta_1\cos\theta_2 = -1 \qquad (A1.3)$$

und mit $\theta_2 = \pi-\theta_1$ lautet der Relativwinkel $\phi_1-\phi_2 = \pi$, solange $\theta_1 \neq 0$ oder π. Die Multiplikation der Kugeloberflächenfunktion $Y^N_k(\theta_i,\phi_i)$ ergibt für (A1.2)

$$W(\vec{k}_1,\vec{k}_2,t) = \frac{1}{4\pi}(a_o+a_2\cos^2\theta_1+a_4\cos^4\theta_1) \qquad (A1.4)$$

mit $a_o = 1+A_{22}(1/4+3/4G_{22}^2)$
$a_2 = A_{22}(-3/2+3G_{22}^1-3/2G_{22}^2)$
$a_4 = A_{22}(9/4-3G_{22}^1+3/4G_{22}^2)$

Dabei ist $A_{oo} = 1$ und es gilt analog zu Gl.(2.18)

$$G_{kk}^N(t) = \sum_n S_{nN}^{kk} \cos(n\omega_o t) \qquad \text{(A1.5)}$$

mit

$$S_{nN}^{kk} = \sum_{m,m'} \begin{pmatrix} I & I & k \\ m' & -m & N \end{pmatrix}^2 \cdot (2k+1) \qquad \text{(A1.6)}$$

- (b) $\sphericalangle(\vec{K}_1,\vec{K}_2) = 90^0$: Nimmt man $\vec{K}_1,\vec{K}_2$ und $\vec{n} = \vec{K}_1 \times \vec{K}_2$ als neues Koordinatensystem (Abb.5.4a auf S.75 mit $\Theta = 90^0$), so läßt sich zeigen, daß die Richtung der Quantisierungsachse, die im Fall eines axialsymmetrischen Feldgradienten mit einer Hauptachse $\vec{c}$ des Einkristalls zusammenfällt, durch zwei Winkel ϑ und ϕ beschrieben wird. In dem neuen System ist dann

$$\cos\theta_1 = \cos\phi\cos\vartheta \qquad \cos\theta_2 = \sin\phi\cos\vartheta \qquad \text{(A1.7)}$$

Mit der obigen Bedingung

$$\cos(90^o) = \cos(\phi_1-\phi_2)\sin\theta_1\sin\theta_2+\cos\theta_1\cos\theta_2 = 0 \qquad \text{(A1.8)}$$

lautet (A1.2)

$$W(\vec{k}_1,\vec{k}_2,t) = \frac{1}{4\pi}(b_o+b_2\cos^2\vartheta+b_8\cos^4\vartheta\cos^2\phi\sin^2\phi) \qquad \text{(A1.9)}$$

mit $b_o = 1+A_{22}(1/4-3/4G_{22}^2)$
$b_2 = A_{22}(-3/4+3/4G_{22}^2)$
$b_8 = A_{22}(9/4-3G_{22}^1+3/4G_{22}^2)$

Drückt man in (A1.4) $\cos\vartheta_1$ durch (A1.7) aus und sammelt mit (A1.5) und (A1.6) gleiche Frequenzen $n\omega_o$, so erhält man die in Tab.4.5 aufgeführten Amplituden $a_{kn}(\vartheta,\phi)$.

In Abb.5.5 sind die Funktionen $W(\Theta,t)$ für die beiden Detektorwinkel $\Theta = 180^0$ und 90^0 sowie deren Summe abgebildet in Abhängigkeit der durch ϑ und ϕ gegebenen Kristallorientierung $\vec{c}$.

A2. Methode der "Kleinsten Quadrate" (χ^2-Test)

Zum Auffinden einer "passenden" theoretischen Funktion F(t), die eine Ausgleichskurve mit minimaler Abweichung von den Meßwerten R(t) bildet, wird die Methode der "Kleinsten Quadrate" ("least square method") benutzt in Verbindung mit dem Pearsonschen χ^2-Test (EDJ 71).

Die Daten im Spektrum R(t) sind durch Umformen aus gemessenen Intensitäten gewonnen worden, deren Werte statistischer Natur sind; bei Annahme einer geeigneten statistischen Verteilung (gewöhnlich ist es eine Gauß- oder Poisson-Verteilung) läßt sich eine mittlere Schwankung für die Meßwerte $I(\theta,t)$ angeben und daraus ebenfalls ein mittlerer absoluter Fehler $\Delta R(t)$ für das Spektrum R(t) (vgl. BLE 67), der ein Maß für die erlaubte Abweichung ist. Daneben müssen für die freien Parameter p_j, welche die Form der Funktion F(t) bestimmen, die Werte gefunden werden, die einer optimalen Anpassung von F(t) an R(t) entsprechen. Als Norm für die Abweichung dient gewöhnlich die Gaußsche Fehlerquadratsumme

$$Q^2(p_1,\ldots,p_M) = \sum_{i=1}^{N} (F_i - R_i)^2 \qquad \text{(A2.1)}$$

Dabei ist angenommen worden, daß Messungen nur zu bestimmten Zeiten t_i an N diskreten Punkten erfolgt sind ($R_i = R(t_i)$). Da in Gl.(A2.1) die einzigen freien Größen die M zu bestimmenden Parameter p_j sind, kann nur durch sie die quadratische Abweichung verkleinert werden. Bei linearer Abhängigkeit der Funktion F(t) von den Parametern p_j ergeben sich aus der Bedingung, Gl.(A2.1) zu minimalisieren, direkt die sogenannten "Normal-Gleichungen"

$$\frac{\partial Q^2}{\partial p_j} = 0 \qquad j=1,\ldots,M \qquad \text{(A2.2)}$$

und daraus die gesuchten Parameter p_j. Im allgemeinen Fall liegt diese lineare Abhängigkeit nicht vor, so daß die optimalen Werte mit Hilfe einer Iteration in Schritten von Δp_j gefunden werden müssen. Ist die letzte Näherung $p_j^o = p_j - \Delta p_j$

nahe dem gesuchten Wert, für den (A2.2) erfüllt ist, läßt sich $Q^2(t,p_j)$ bezüglich p_j linearisieren

$$Q^2(t,p_j) = Q^2(t,p_j^o) + \sum_{k=1}^{M} \frac{\partial Q^2(t,p_j)}{\partial p_k} \Delta p_k + O(\Delta p_k^2) \qquad (A2.3)$$

und damit p_j über die Normal-Gleichung bestimmen. Die numerische Durchführung wird von der Fortran-Subroutine FIT vorgenommen.

Entsprechend den Normal-Gleichungen lassen sich zu den Parametern (p_j) ihre Schwankungen berechnen und die Korrelation der ursprünglich als unabhängig voneinander angenommenen Parameter untereinander. Maximale Korrelation entspräche der linearen Abhängigkeit zweier Parameter p_j und p_k $(j \neq k)$ und damit einer ungeeigneten Parametrisierung der theoretischen Funktion. Zugleich wächst der Grad an Korrelation mit der Anzahl der freien Parameter, weshalb bei jeder Analyse zugunsten der zu bestimmenden Größen möglichst viele Parameter auf Grund zusätzlicher physikalischer Information festgehalten werden sollten.
Für den optimalen Parametersatz ist (A2.1) minimal geworden; ist F(t) eine geeignete Ausgleichsfunktion für das Spektrum R(t), dann sollte die mittlere Abweichung zwischen Theorie und Messung der mittleren statistischen Schwankung ΔR_i entsprechen

$$\sum_{i=1}^{N} \frac{(F_i - R_i)^2}{\Delta R_i^2} = N \qquad (A2.4)$$

Eine signifikante Abweichung dieser Summe von N deutet entweder auf falsche statistische Fehler ΔR_i oder zusätzliche systematische Fehler hin, die sich immer als falsche Wahl der Funktion $F(t,p_j)$ interpretieren lassen. Wenn die einzelnen Summanden voneinander unabhängig sind, und R(t) normalverteilt ist, besitzt (A2.4) für große N asymptotisch eine "chi-square" Verteilung $\chi^2(N)$ mit N Freiheitsgraden. Ihr Erwartungswert ist N mit der Varianz 2N. Damit läßt sich der Pearsonsche χ^2-Test anwenden, der eine Aussage über die Güte der Anpassung $F(t,p_j)$ an R(t) erlaubt. Die Anzahl M der freien Parameter p_j

sowie die Bedingung (A2.4) reduzieren die Zahl der Freiheitsgrade auf N' = N-M-1. Eine Abweichung der Summe (A2.4), wesentlich größer als $\sqrt{2N'}$, weist auf eine Unverträglichkeit zwischen Theorie und Messung hin. Obwohl diese Beziehung streng nur für lineare Modelle gilt, soll die Abfrage als Kontrolle bei der Auswertung der Meßdaten verwendet werden. Dabei wird zur Vereinfachung auf den reduzierten Erwartungswert für $\chi^2(N)$ abgefragt

$$\chi^2_r \equiv \frac{1}{N'}\chi^2(N') = 1 \qquad \text{(A2.5)}$$

und die damit verbundene Schwankung

$$\Delta\chi^2_r = \sqrt{2/N'} \qquad \text{(A2.6)}$$

A3. Röntgenstrahlbeugungsdiagramme des Indium- und Antimon-Targets

Beide Diagramme (vgl. Abb.6.1) sind mit einer Cu-Kathode aufgenommen worden. Im Unterschied zum Antimon mit nur einer nicht identifizierten Störlinie (L_1) zeigt das Diagramm für Indium sechs solcher Linien (L_1- L_6). Infolge des Teilchenbeschusses ist die Gold-Schutzschicht zum Zeitpunkt der Analyse bereits teilweise abgedampft gewesen, so daß nur beim Antimon die für das kubische Goldgitter typischen Reflexe sichtbar sind. Bei allen Targetanalysen kann Zinksulfid, die Reaktionsschicht, weder in seiner hexagonalen (a-ZnS), noch in seiner kubischen Form (ß-ZnS) eindeutig gesehen werden; es ist zu vermuten, daß sich entgegen der Annahme in Kapitel 4 die Substanz zum größten Teil beim Dampfen zersetzt hat oder zumindest nicht in der Lage gewesen ist, ein definiertes Gitter beim Kondensieren zu bilden. Die größere Anzahl der Störlinien beim Indium könnte übereinstimmen mit den Anzeichen für eine 2. Frequenz, die beim Antimon nicht gesehen worden sind. - Beide Targets zeigen die für eine polykristalline Probe typischen Bragg-Reflexe. Dabei ist der Beugungswinkel 2ϑ, unter

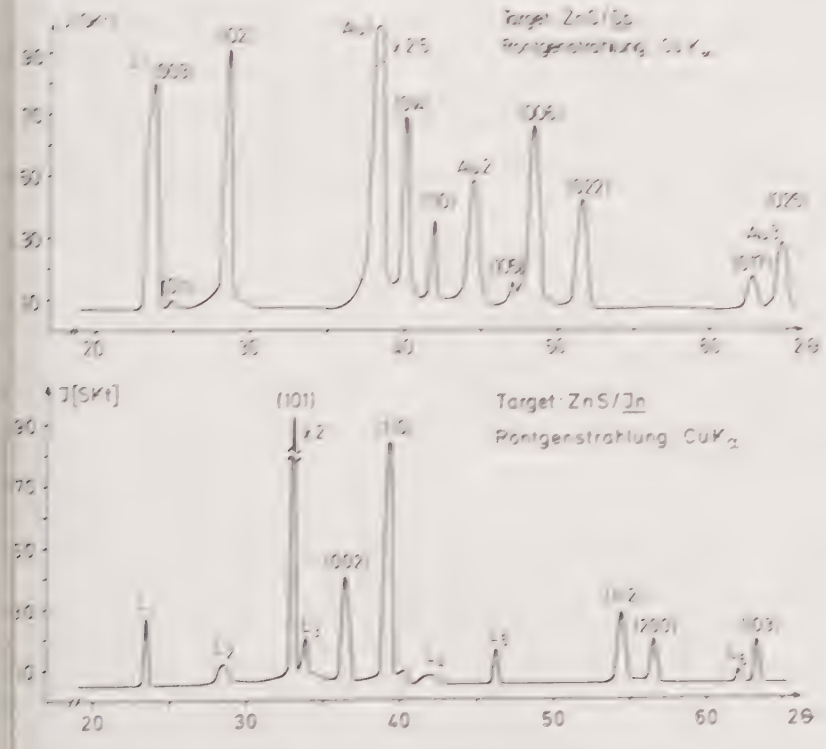


Abb. 6.1:
Röntgenbeugungsdiagramm von der Analyse zweier Schichttargets.

dem die Reflexe registriert worden sind, durch die "Bragg-Bedingung" definiert

$$2 \cdot d \cdot \sin\theta = n \cdot \lambda$$

(d = Netzebenenabstand, n = 1,2,..., λ = Wellenlänge der Röntgenstrahlung). Alle für das jeweilige Gitter notwendigen Reflexe sind im Diagramm vorhanden und können eindeutig zugeordnet werden. Dasselbe gilt für die aus dem Gold stammenden Linien Au1 - Au3. Die nicht zugeordneten Linien L1 - L6 könnten qualitativ dem β-ZnS zugeschrieben werden oder dem Wolframoxyd ($WO_{2,90}$), das beim Indium als Schiffchen-Material gedient hat; jedoch ist das nicht eindeutig, da ein Teil der Reflexe fehlt.

- Die aus einer solchen Analyse gewonnenen Aussagen gelten nicht für alle Schichten des Targets, da durch die Absorption der Röntgenstrahlung (Cu(K_{α_1},K_{α_2}) = 8,28 keV) nur eine begrenzte Anzahl von Schichten durchdrungen werden kann. Der Massenabsorptionskoeffizient für Elemente in der Massengegend von Kadmium und Antimon ist für diese Strahlung in der Größenordnung von μ/ρ = 250 cm^2/g (KLA 59). Damit ergibt sich bei einer gedampften Schichtdicke der Gastmatrizen von 80 $\mu g/cm^2$ unter einem mittleren Nachweiswinkel $2\theta = 40^0$ eine Schwächung des Röntgenstrahls auf 1 % seiner ursprünglichen Intensität, wenn 40 Schichten durchdrungen sind. Tab.6.1 zeigt die jeweils

Tab. 6.1: Abschwächung I_R von Röntgenstrahlen (E_γ = 8,28 keV, μ/ρ = 250 cm^2/g), in Abhängigkeit von der analysierten Schichtenzahl und dem Analysierwinkel 2θ bei der Aufnahme von Beugungsdiagrammen (Debeye-Scherrer Verfahren) an Schichttargets

Schichtenzahl [80µg/cm²]	$I_R = f(2\theta)$ [%]		
	$2\theta = 20^0$	$2\theta = 40^0$	$2\theta = 60^0$
1	80	89	92
2	63	79	85
5	32	56	67
10	10	31	45
40	0,01	1	4

noch verbleibende Intensität I_R der Strahlung in Abhängigkeit von der Schichtzahl und dem Analysierwinkel. Die angegebenen Werte bilden nur eine Abschätzung nach oben, da die Absorption in den Reaktionsschichten (ZnS) nicht berücksichtigt worden ist. Aus der Tabelle ist zu sehen, daß die aufgenommenen Beugungsbilder nur die kristalline Struktur der obersten 10 Schichten beschreiben, und man nicht erwarten kann, daß die gemessenen relativen Intensitäten der Bragg-Reflexe mit den vorgeschriebenen Werten übereinstimmen: Auf Grund der heterogenen Struktur der analysierten Targets - sie sind aufgebaut aus wechselnden Schichten verschiedenartiger Gitter - tragen unter verschiedenen Winkeln θ unterschiedlich viele Kristalle der zu analysierenden Gastmatrix zum dazugehörigen Reflex bei, da die Absorption nicht linear, sondern exponentiell erfolgt.

Trotz dieser Einwände und der nur beschränkten Analysierbarkeit der Proben infolge der Absorption der Röntgenstrahlung lassen sich die Ergebnisse mit der Annahme von polykristallinen Schichten in Einklang bringen, da alle für das Gitter notwendigen Reflexe vorhanden sind. Eine Aussage über den Grad der Kristallisation ist hiernach jedoch nicht möglich.

Literaturnachweis

AAH 53 K.Alder, H.Albers-Schönberg, E.Heer, T.B.Novey
Helv. Phys. Acta 26 (1953) 761

ABF 51 H.Aeppli, A.S.Bishop, H.Frauenfelder, M.Walter, W.Zünti
Phys. Rev. 82 (1951) 550

ABP 53 A.Abragam, R.V.Pound
Phys. Rev. 92 (1953) 943

AJZ 60 F.Ajzenberg-Selove (ed.):
Nuclear Spectroscopy, Part A. New York, London 1960

BBH 72 J.Bleck, R.Butt, H.Haas, W.Ribbe
Phys. Rev. Lett. 29 (1972) 1371

BCM 70 H.Bertschat, J.Christiansen, H.Mahnke, E.Recknagel, G.Schatz, R.Sielemann, W.Witthuhn
Phys. Rev. Lett. 25 (1970) 102

BGL 75 W.Bartsch, J.Golczewski, W.Leitz, H.-E.Mahnke, W.Semmler, R.Sielemann, Th.Wichert
Phys. Lett. 50 A (1975) 413

BHL 69 J.Bleck, D.W.Haag, W.Leitz, R.Michaelsen, W.Ribbe F.Sichelschmidt
Nucl. Phys. A 123 (1969) 65

BHR 74 R.Butt, H.Haas, S.S.Rosenblum
Phys. Rev. B 9 (1974) 3705

BIE 64 J.Biersack
HMI-Bericht 27, 1964

BLE 67 J.Bleck
Diplomarbeit, FU Berlin, 1967

BLM 73 H.Bertschat, U.Leithäuser, K.H.Maier, E.Recknagel, B.Spellmeyer
Nucl. Phys. A 215 (1973) 486

BLM 74 W.Bartsch, W.Leitz, H.-E.Mahnke, W.Semmler, R.Sielemann, Th.Wichert
HMI-Jahresbericht 1974

BLM 75 W.Bartsch, W.Leitz, H.-E.Mahnke, W.Semmler, R.Sielemann, Th.Wichert
eingereicht bei Zeitschr. f. Phys.

BMS 67 J.Braunsfurth, J.Morgenstern, H.Schmidt
Zeitschr. f. Phys. 202 (1967) 321

BOE 72 E.Bodenstedt, U.Ortabasi, W.E.Ellis
Phys. Rev. B 6 (1972) 2909

BRJ 71 H.Bernas, M.O.Ruoult, B.Jouffrey
Phys. Rev. Lett. 27 (1971) 859

BRM 70 D.M.Brink, J.H.Mulvey (eds.):
Progress in Nuclear Physics, Vol.11. Oxford 1970

BRR 73 D.Brandt, S.S.Rosenblum
Suppl. Phys. Soc. Jap. 34 (1973) 178

BRS 74 H.Bertschat, E.Recknagel, B.Spellmeyer
Phys. Rev. Lett. 32 (1974) 18

CBD 74 R.L.Cohen, G.Beer, B.Deutch
Phys. Rev. Lett. 33 (1974) 518

CBK 73 G.W.Carriveau, G.Beauchemin, E.J.Knystantas, E.H.Pinnington, R.Drouin
Phys. Lett. 46 A (1973) 291

DAP 61 T.P.Das, M.Pommerantz
Phys. Rev. 123 (1961) 2070

DAR 69 K.C.Das, D.K.Ray
Phys. Rev. 187 (1969) 777

DLF 72 J.M.McDonald, P.M.S.Lessar, D.B.Fossan
Phys. Rev. Lett. 28 (1972) 1057

DRR 75 F.Dimmling, D.Riegel, K.-G.Rensfelt, C.J.Herrlander
eingereicht bei Phys. Rev. Lett.

EDJ 71 W.T.Eadie, D.Dryard, F.E.James, M.Roos, B.Sadoulet: Statistical Methods in Experimental Physics. Amsterdam, London 1971

ERS 58 T.Ericson, V.Strutinski
Nucl. Phys. 8 (1958) 284

FEJ 69 F.D.Feiock, W.R.Johnson
Phys. Rev. 187 (1969) 39

FLY 72 C.P.Flynn:
Point Defects and Diffusion. Oxford 1972

FOR 73 M.Forker
Nucl. Inst. Meth. 106 (1973) 121

FRF 67 A.J.Freeman, R.B.Frankel (eds.):
Hyperfine Interactions. New York 1967

FRI 52 J.Friedel
Phil.Mag. 43 (1952) 153

FRI 58 J.Friedel
Suppl. Nuovo Cimento 2 (1958) 287

FRS 65 H.Frauenfelder, R.M.Steffen in:
Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, Vol.2.
Ed. K.Siegbahn. Amsterdam 1965

FTH 70 D.E.Farrell, J.H.Tripp, T.J.Harding
Phys. Rev. B 1 (1970) 4533

FUC 69 G.H.Fuller, V.W.Cohen
Nuclear Data Tables A 5 (1969) 433

GBH 66 L.Grodzins, R.Borchers, G.B.Hagemann
Phys. Lett. 21 (1966) 214

GME 59 Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie, Erg.Bd.
Kadmium. Weinheim 1959
ibid. Indium. 1936
ibid. Zinn. 1971
ibid. Antimon. 1950

GOK 71 G.Goldring, R.Kalish (eds.):
Hyperfine Interactions in Excited Nuclei. New York 1971

GOL 63 H.Goldstein:
Klassische Mechanik. Frankfurt a.M. 1963

HAB 65 J.P.Hazan, M.Blann
Phys. Rev. B 137 (1965) 1202

HAS 73 H.Haas, D.A.Shirley
Jour. Chem. Phys. 58 (1973) 3339

HEW 63 R.R.Hewitt, B.F.Williams
Phys. Rev. 129 (1963) 1188

HLM 73 H.Haas, W.Leitz, H.-E.Mahnke, W.Semmler, R.Sielemann, Th.Wichert
Phys. Rev. Lett. 30 (1973) 656

HOS 73 H.Horie, K.Sugimoto (eds): Nuclear Moments and Nuclear Structure
Jour. Phys. Soc. Jap. Suppl. 34 (1973)

HSH 74 P.Hille, P.Sperr, M.Hille
Nucl. Phys. A 232 (1974) 157

HYD 66 E.H.Hygh, T.P.Das
Phys. Rev. 143 (1966) 452

IRS 75 E.Ivanow, E.Recknagel, W.Semmler, E.Schlodder
HMI-Jahresbericht 1974

JED 67 P.Jespersgard, J.A.Davies
Can. Jour. Phys. 45 (1967) 2983

JMD 73 P.Jena, S.D.Mahanti, T.P.Das
Phys. Rev. B 7 (1973) 975

JOG 66 W.S.Johnson, J.F.Gibbons
Appl. Phys. Lett. 9 (1966) 321

KAU 72 E.N.Kaufmann
Nucl. Instr. Meth. 103 (1972) 447

KAW 74 E.Karlsson, R.Wäppling (eds.):
Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay 1974

KKF 74 K.Krien, B.Klemme, R.Folle, E.Bodenstedt
Nucl. Phys. A 228 (1974) 15

KLA 59 H.P.Klug, L.E.Alexander (eds.):
X-Ray Diffraction Procedures. New York, London 1959

KLS 68 O.Klepper, H.Spehl
Zeitschr. f. Phys. 215 (1968) 17

KOP 58 H.Kopfermann:
Nuclear Moments. New York 1958

KRN 71 H.van Kruyten, B.van Nooijen (eds.):
Angular Correlation in Nuclear Desintegration.
Groningen 1971

LAB 71 Landolt-Börnstein:
Zahlenwerke und Funktionen, Bd.2. Berlin, Heidelberg, New York 1971

LIS 61 J.Lindhard, M.Scharff
Phys. Rev. 124 (1961) 128

LIW 71 J.Lindhard, A.Winther
Nucl. Phys. A 166 (1971) 413

LNS 68 J.Lindhard, Vibeke Nielson, M.Scharff
Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 36 (1968) Nr.10

LSS 63 J.Lindhard, M.Scharff, H.E.Schitt
Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 33 (1963) Nr.14

MAG 70 L.I.Maissel, R.Glang (eds.):
Handbook of Thin Film Technology. New York 1970

MAS 66 E.Matthias, D.A.Shirley
Nucl. Instr. Meth. 45 (1966) 309

MEI 69 H.Meinhold
Dissertation, HMI 1969

MSD 72 N.C.Mohapatra, C.M.Singal, T.P.Das, P.Jena
Phys. Rev. Lett. 29 (1972) 456

MSD 73 N.C.Mohapatra, C.M.Singal, T.P.Das
Phys. Rev. Lett. 31 (1973) 530

MSS 63 E.Matthias, W.Schneider, R.M.Steffen
Phys. Lett. 4 (1963) 41

MUR 55 K.Murakawa
Phys. Rev. 100 (1955) 1369

NAH 58 H.Noya, A.Arima, H.Horie
Progr. Theor. Phys. Suppl. 8 (1958) 33

NEL 69 R.S.Nelson
Rad. Eff. 2 (1969) 47

NIL 66 D.K.Nichols, V.A.J.van Lint
Solid State Phys. 18 (1966) 1

NOS 70 L.C.Northcliffe, R.F.Schilling
Nucl. Data Tables A 7 (1970) 233

ORE 58 J.Orear
UCLR-8417

POD 60 M.Pommerantz, T.P.Das
Phys. Rev. 119 (1960) 70

RAR 71 R.S.Raghavan, P.Raghavan
Phys. Lett. 36 A (1971) 313

RAR 72 R.S.Raghavan, P.Raghavan
Phys. Rev. Lett. 28 (1972) 54

REC 74 E.Recknagel in:
Nuclear Spectroscopy and Reactions, Part C. Ed.
J.Cerny. New York, London 1974

RIF 67 D.A.Rigney, C.P.Flynn
Phil. Mag. 15 (1967) 1213

RKH 74 L.Ph.Roesch, R.Kulessa, F.Horber, H.P.Seiler,
P.Marmier
Phys. Rev. B 9 (1974) 4638

RPV 69 F.H.Ruddy, B.D.Pate, E.W.Vogt
Nucl. Phys. A 127 (1969) 323

RRF 73 R.S.Raghavan, P.Raghavan, I.M.Friedt
Phys. Rev. Lett. 30 (1973) 10

RRK 74 P.Raghavan, R.S.Raghavan, E.N.Kaufmann, K.Krien,
R.A.Naumann
Jour. Phys.,F: Metal Phys. 4 (1974) L 80

RUP 69 F.H.Ruddy, B.D.Pate
Nucl. Phys. A 127 (1969) 305

SIE 74 R.Sielemann
Dissertation, FU Berlin, 1974

SHI 71 V.S.Shirley in:
GOK 71, Vol.4

TRF 73 J.H.Tripp, D.E.Farrell
Phys. Rev. B 7 (1973) 571

VAW 69 M.I.Valic, D.Llewelyn Williams
Jour. Phys. Chem. Solids 30 (1969) 2337

WEH 73 S.A.Wender, N.Hershkowitz
Phys. Rev. B 8 (1973) 4901

WET 61 F.W.de Wette
Phys. Rev. 123 (1961) 103

WGY 65 R.E.Watson, A.C.Gossard, Y.Yafet
Phys. Rev. 140 (1965) 375

Diese Arbeit ist im Hahn-Meitner-Institut Berlin, Bereich Kern- und Strahlenphysik durchgeführt worden. Für Arbeitsmöglichkeit, Mithilfe und Diskussion danke ich besonders W.Bartsch, K.Franke, J.Golczewski, H.Haas, B.Lamp, I.Lang, W.Leitz, K.-H.Lindenberger, H.-E.Mahnke, E.Recknagel, W.Semmler und R.Sielemann sowie dem Personal des Beschleunigers und den Mitgliedern des Bereiches Datenverarbeitung und Elektronik.

Außerdem ist diese Arbeit zu Hause durchgeführt worden, und so danke ich besonders meiner Frau Viola und meinem Sohn Philipp für Mithilfe und Geduld.

Lebenslauf

1946 am 15.7. Geburt in Berlin als drittes Kind des Diplom-Ingenieurs Herbert Wichert und seiner Frau Anna, geb. Omer

1953 Besuch der 17. Grundschule (Stechlinsee-Schule) in Berlin

1957 Übergang auf den altsprachlichen Zweig des Canisius-Kolleg Gymnasiums in Berlin

1966 Abitur und Immatrikulation für das Fach Physik an der Freien Universität Berlin. Im Verlauf des Studiums Wechsel für ein Semester (SS 1969) an die Maximilians-Universität in München

1971 Diplomprüfung in Physik mit der Arbeit "Bestimmung von magnetischen Kernmomenten angeregter Zustände im ^{71}As und ^{92}Nb durch Beobachtung der gestörten Winkelkorrelation nach Kernreaktionen"

1971 Eheschließung mit Viola Juliane Ehrhardt

1974 Geburt des Sohnes Philipp

Seit 1971 bin ich als wissenschaftlicher Assistent am Hahn-Meitner-Institut Berlin, Bereich Kern- und Strahlenphysik, tätig und arbeite dort im Rahmen der Nuklearen Festkörperphysik auf dem Gebiet "Kernmomente und innere Felder".